



# Etude et développement de sources laser XUV par injection d'harmoniques d'ordre élevé

Jean-Philippe Goddet

## ► To cite this version:

Jean-Philippe Goddet. Etude et développement de sources laser XUV par injection d'harmoniques d'ordre élevé. Physique [physics]. Ecole Polytechnique X, 2009. Français. NNT : . pastel-00005837

**HAL Id: pastel-00005837**

**<https://pastel.archives-ouvertes.fr/pastel-00005837>**

Submitted on 3 Jun 2010

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# **Thèse de doctorat de L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE**

Spécialité :  
Lasers et Matière

Présentée par

**Jean-Philippe GODDET**

Pour obtenir le grade de  
Docteur de l'Ecole Polytechnique

## **Etude et développement de sources laser XUV par injection d'harmoniques d'ordre élevé**

Soutenue le 7 mai 2009 devant le jury composé de :

M. Philippe Balcou	Rapporteur
M. Philippe Martin	Rapporteur
Mme. Sylvie Jacquemot	Examinatrice
M. Victor Malka	Examineur
M. David Ros	Président du jury
M. Stéphane Sebban	Directeur de thèse

Thèse préparée au Laboratoire d'Optique Appliquée (UMR CNRS 7639)



---

## **Remerciements :**

Ce travail synthétise les résultats d'un peu plus de trois années de recherche au sein du Laboratoire d'Optique Appliquée. Je remercie tout d'abord Gérard Mourou puis Antoine Rousse de m'y avoir accueilli.

Je remercie tout particulièrement Stéphane Sebban, mon Directeur de thèse. Je tiens à saluer la confiance dont il a fait preuve et le remercie pour le temps et l'énergie qu'il a consacré à me diriger et à m'accompagner jusqu'au dernier moment de ma thèse.

Je remercie Philippe Balcou et Philippe Martin d'avoir accepté d'être rapporteurs à mon jury de Thèse. Merci également à David Ros d'avoir présidé le jury, ainsi qu'à Victor Malka et Sylvie Jacquemot d'avoir accepté de faire partie de mon jury. Je suis très honoré de bénéficier de leur expérience et de leurs points de vue avisés sur ce travail.

Je désire remercier tous les membres de mon groupe, présent ou passé : Julien Gautier, Constance Valentin, Guillaume Lambert, Maxime Ribière, Fabien Tissandier, Tatiana Marchenko, Evangelos Papalazarou, Anne-Sophie Morlens et Philippe Zeitoun. J'ai pu bénéficier dans ce groupe d'une écoute et d'un soutien permanent.

Le laser a été un paramètre déterminant dans les expériences que nous avons menées, et je remercie donc l'équipe laser de la salle jaune : Jean-Philippe Rousseau, Fred Burgy et Amar Tafzi. Merci aussi à Charly et Mickaël pour toutes les pièces mécaniques réalisées en un temps record ainsi qu'à Patricia, Octavie, Sandrine, Cathy et Claudine pour leur gentillesse et leur disponibilité au secrétariat. Je remercie également le service informatique, Fatima Alayane, Arnaud Chiron, Pierre Zaparucha ainsi qu'Alain Paris pour la résolution des fréquents soucis d'ordinateur et de réseau. Enfin, merci à Denis Douillet, Thierry Lefrou, Grégory Iaquanello, Esnault Cédric et Marc Louzir sans qui les expériences n'auraient jamais eu lieu.

Ce travail est le fruit d'une collaboration avec le Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas. Je remercie donc Gilles Maynard, Brigitte Cros et Kévin Cassou pour le temps consacré à cette collaboration, leur disponibilité et leur amabilité.

J'ai beaucoup apprécié la collaboration avec l'équipe du LIXAM, qui a été autant enrichissante qu'agréable. Je remercie donc chaleureusement Sophie Kazamias, Olivier Guilbaud, Fabien Plé, Annie Klisnick et Jamil Habib. J'aimerais remercier particulièrement Moana Pittman pour son soutien et nos nombreuses discussions en voiture sur tout et n'importe quoi.

J'ai eu l'occasion d'interagir avec de nombreuses personnes qui ont contribué à rendre mon séjour au LOA agréable, et je remercie donc :

Jérôme Faure, Pascal Rousseau, Gilles Chériaux, Kim Ta Phuoc, Gilles Rey, Guy Hamoniaux, Yi Liu, Armino Dos Santos, Brigitte Mercier, Frédérique Auge-Rochereau, Laura Antonucci, Romuald Fitour et Tomas Mocek.

Enfin, je voudrais remercier mes parents, ma famille et mon amie sans qui rien de tout cela n'eût été possible.



---

# Table des matières

<b>INTRODUCTION.....</b>	<b>1</b>
<b>CHAPITRE 1 : PRESENTATION GENERALE DES SOURCES XUV .....</b>	<b>5</b>
1.1 LES LASERS A ELECTRONS LIBRES .....	5
1.2 LES EFFETS NON LINEAIRES : LE RAYONNEMENT HARMONIQUE .....	8
1.3 LES LASERS DANS LE DOMAINE XUV .....	9
1.3.1 Mécanisme de pompage .....	9
1.3.1.1 Schéma par recombinaison .....	9
1.3.1.2 Schéma collisionnel .....	11
1.3.2 Etat de l'art des lasers XUV par excitation collisionnelle .....	13
1.4 LES SOURCES XUV INJECTEES PAR HARMONIQUE .....	18
1.4.1 Injection d'harmonique dans un laser XUV.....	18
1.4.2 Injection d'harmoniques dans un LEL .....	19
<b>CHAPITRE 2 : PHYSIQUE DES LASERS XUV OFI EN MODE INJECTE .....</b>	<b>21</b>
2.1 INTERACTION LASER-GAZ EN CHAMP FORT .....	21
2.1.1 Atomes en champ intense.....	21
2.1.2 Ionisation.....	22
2.1.2.1 Les différents types d'ionisation .....	22
2.1.2.2 Paramètre de Keldysh .....	26
2.1.2.3 Taux d'ionisation tunnel .....	26
2.1.3 Influence de la polarisation sur la distribution énergétique des électrons .....	28
2.1.4 Propagation et réfraction d'un laser intense dans un milieu gazeux.....	30
2.1.4.1 Propagation du faisceau gaussien dans le vide.....	30
2.1.4.2 Propagation du faisceau gaussien dans le milieu gazeux .....	32
2.1.4.3 Réfraction.....	33
2.1.4.4 Effet de la réfraction sur la propagation.....	35
2.1.4.5 Simulations numériques de la propagation du laser de pompe .....	36
2.2 LA PHYSIQUE DES HARMONIQUES D'ORDRE ELEVE .....	39
2.2.1 Le principe.....	39
2.2.1.1 Réponse de l'atome unique .....	39
2.2.1.2 Réponse macroscopique.....	42
2.2.2 Propriétés des harmoniques d'ordre élevé.....	42
2.3 L'AMPLIFICATEUR A 32,8 NM DANS LE KRYPTON NICKELOÏDE .....	45
2.3.1 Pompage collisionnel dans le krypton nickeloïde .....	46

2.3.2	<i>Emissivité et coefficient de gain</i> .....	47
2.3.3	<i>Transfert radiatif</i> .....	49
2.3.4	<i>Régime de saturation</i> .....	51
2.3.5	<i>Largeur spectrale</i> .....	53
<b>CHAPITRE 3 : CARACTERISATION D'UN AMPLIFICATEUR XUV OFI PAR AMPLIFICATION D'HARMONIQUE</b> .....		<b>61</b>
3.1	DISPOSITIF EXPERIMENTAL .....	61
3.1.1	<i>La chaîne laser infrarouge</i> .....	61
3.1.2	<i>Chaîne laser XUV</i> .....	63
3.1.2.1	Description du dispositif expérimental .....	63
3.1.2.2	Ajustement du couplage injecteur-amplificateur .....	68
3.1.2.3	Le spectrographe d'analyse .....	71
3.2	ETUDE DU LASER XUV INJECTE EN FONCTION DES PARAMETRES DE GENERATION .....	73
3.2.1	<i>Mesure de l'amplification à 32,8 nm</i> .....	73
3.2.2	<i>Influence de la longueur d'amplification</i> .....	76
3.2.3	<i>Influence de la densité sur l'amplification de la raie 4d-4p à 32,8 nm</i> .....	80
3.2.4	<i>Influence de la polarisation du laser de pompe sur l'amplification à 32,8 nm</i> .....	88
CONCLUSION .....		90
<b>CHAPITRE 4 : CARACTERISATION SPECTRO-TEMPORELLE DU LASER XUV OFI INJECTE PAR HARMONIQUE</b> .....		<b>93</b>
4.1	DISPOSITIF EXPERIMENTAL .....	94
4.2	MESURES DE LA COHERENCE TEMPORELLE .....	97
4.2.1	<i>Le cas optimal</i> .....	97
4.2.1.1	Modélisation .....	101
4.2.1.2	Effet de la longueur du milieu amplificateur .....	104
CONCLUSION : .....		106
<b>CHAPITRE 5 : CARACTERISATION SPATIALE DU LASER XUV INJECTE</b> .....		<b>111</b>
5.1	MESURE DE LA DISTRIBUTION D'ENERGIE DU LASER XUV INJECTE .....	111
5.1.1	<i>Dispositif expérimental</i> .....	111
5.1.2	<i>Résultats expérimentaux</i> .....	113
5.1.2.1	Sans injection .....	113
5.1.2.2	Profils injectés .....	114
5.1.3	<i>Influence de la densité de l'amplificateur</i> .....	118
5.1.4	<i>Influence de la longueur de la cellule amplificatrice</i> .....	122
5.1.5	<i>Estimation par impulsion de l'énergie du laser XUV injecté</i> .....	124

5.1.6	<i>Stabilité du laser injecté à 32,8 nm</i> .....	126
5.2	MESURE DE LA COHERENCE SPATIALE DU LASER XUV INJECTE.....	129
5.2.1	<i>Expérience des fentes d'Young : principe et montage expérimental</i> .....	129
5.2.1.1	Principe .....	130
5.2.1.2	Montage expérimental.....	132
5.2.2	<i>Résultats expérimentaux</i> .....	134
5.3	MESURE DU FRONT D'ONDE DU LASER A 32,8 NM .....	138
5.3.1	<i>Principe du senseur de front d'onde de type Hartmann</i> .....	138
5.3.2	<i>Montage expérimental</i> .....	140
5.3.3	<i>Mesure de la distorsion du front d'onde</i> .....	140
5.4	MODELISATION SIMPLE DU FILTRAGE SPATIAL PAR LE GAIN .....	144
5.4.1	<i>Reconstruction de la source</i> .....	144
5.4.2	<i>Filtrage par le gain</i> .....	148
	CONCLUSION .....	151
	<b>CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES.....</b>	<b>153</b>
	CONCLUSION GENERALE .....	153
	PERSPECTIVES .....	155
	<b>ANNEXES : .....</b>	<b>159</b>
	ANNEXE A : RAPPELS SUR LA NOTION DE COHERENCE .....	159
	ANNEXE B : RAPPELS SUR LA NOTION FRONT D'ONDE .....	163
	ANNEXE C : PUBLICATIONS .....	165
	<b>BIBLIOGRAPHIE.....</b>	<b>207</b>

---

# Introduction

La production de sources de rayonnement cohérent XUV brèves et intenses a fait des progrès importants ces quinze dernières années. Cette thématique a longtemps été guidée par la communauté des physiciens travaillant avec les lasers à haute intensité. Toutefois, les projets récents de lasers à électrons libres X ont conduit à ce que la communauté des synchrotrons joue désormais un rôle de premier plan. Les machines en préparation devraient permettre d'atteindre des brillances crêtes de plusieurs ordres de grandeur, plus importantes que les sources X plus classiques, et ainsi permettre l'émergence de nouvelles voies de recherche jusqu'à présent inexplorées, dans des domaines aussi variés que l'environnement, la biologie, l'optique non-linéaire, la chimie et la création d'états exotiques de la matière. Toutefois, le coût élevé de ces installations et leur accès restreint montre qu'il est toujours nécessaire d'explorer des possibilités de développements de sources X cohérentes « alternatives » moins coûteuses, plus compactes et de performances voisines. Dans la gamme de longueur d'onde (1-50 nm) qui va nous intéresser tout au long de ce manuscrit, nous pouvons distinguer à l'heure actuelle trois axes de recherche bien spécifiques : les lasers à électrons libres X, les harmoniques d'ordre élevé et les lasers XUV.

Les travaux réalisés dans le cadre de cette thèse s'inscrivent dans ce contexte et visent à étudier une nouvelle géométrie de lasers XUV inspirée des lasers de puissance développés dans l'infrarouge. Cette géométrie, consistant en un injecteur (une source d'harmoniques d'ordre élevé) couplé à un amplificateur (plasma créé par laser), est une chaîne laser de puissance dans la gamme XUV. Ce schéma, proposé par T. Ditmire en 1995, a été démontré en 2004 au Laboratoire d'Optique Appliquée [1] avec un amplificateur plasma créé par l'interaction d'un laser intense et d'un milieu gazeux [2]. Cette thèse s'inscrit dans la continuité de ce travail en tentant d'aborder différents aspects

liés, non seulement à une meilleure compréhension des processus physiques impliqués, mais aussi à la caractérisation spatio-temporelle de ce type de source.

Le laser XUV que j'appellerai tout au long de ce travail « Laser XUV injecté » est produit par l'injection d'harmonique d'ordre élevé dans un plasma de krypton créé par OFI (Optical Field Generation) qui émet à une longueur d'onde de 32,8 nm.

Ce document est divisé en 5 chapitres dont les objectifs sont décrits ci-dessous.

- **Le chapitre 1** est consacré à une présentation des différentes sources XUV cohérentes. Je commencerai par une présentation succincte des trois principales sources existantes que sont le rayonnement des lasers à électrons libres, le rayonnement d'harmoniques d'ordre élevé et l'émission laser XUV. Dans un second temps je présenterai un panorama général de l'état de l'art des lasers XUV.
- **Le chapitre 2** présente la physique des harmoniques et des amplificateurs XUV collisionnels pompés par laser femtoseconde. Nous nous intéresserons aussi à la spécificité de l'amplification d'harmonique dans un amplificateur plasma de krypton nickeloïde. De plus, les différents codes numériques utilisés au cours de cette thèse seront introduits dans ce chapitre.
- **Le chapitre 3** est consacré à la description du dispositif expérimental des expériences d'injection d'harmonique dans un premier temps. Ensuite, nous étudierons l'influence de différents paramètres, tels que la densité atomique, la longueur du milieu amplificateur et la polarisation du laser de pompe sur le signal amplifié à 32,8 nm.
- **Le chapitre 4** fera l'objet d'une étude sur les propriétés spectro-temporelles du laser XUV injecté. Cette étude a pour but de mesurer la cohérence temporelle du rayonnement amplifié afin d'en déduire sa largeur spectrale et de la comparer à ce que nous pouvons attendre en limite de Fourier.
- **Le chapitre 5** traite des propriétés spatiales de la source. Nous présenterons différentes mesures de la distribution d'énergie du faisceau injecté. Nous nous intéresserons aussi à l'influence de cette géométrie injecteur-amplificateur sur la cohérence spatiale et le front d'onde du rayonnement laser.

---



---

# **Chapitre 1 : Présentation générale des sources XUV**

Dans ce chapitre, nous présenterons les différentes sources de rayonnement XUV cohérent afin de comprendre le contexte scientifique qui a conduit les études réalisées pendant cette thèse. Nous insisterons d'avantage sur les différents types de lasers XUV existants.

## **1.1 Les lasers à électrons libres**

Le « Laser à Electrons Libres » (LEL) [3, 4], ou synchrotron de quatrième génération se distingue du laser traditionnel par son milieu amplificateur. Celui-ci est composé d'une suite de paquets d'électrons relativistes produits par un accélérateur de particules. Les électrons arrivent ensuite dans une structure magnétique périodique permanente appelée « onduleur ». Sous l'effet du champ magnétique, ils acquièrent une vitesse transverse et émettent alors spontanément un rayonnement appelé rayonnement synchrotron. Durant l'interaction entre le faisceau d'électrons et l'onde électromagnétique ainsi obtenue, le paquet d'électrons est modulé longitudinalement de façon à mettre en phase les trains d'onde émis par chaque électron, créant ainsi la cohérence de la source. L'échange d'énergie s'accompagne finalement d'une amplification conduisant à l'effet laser.

L'intérêt du LEL réside dans le fait que toute longueur d'onde peut être, en principe, amplifiée, contrairement aux lasers traditionnels dont la longueur d'onde est fixée par les niveaux atomiques du milieu amplificateur. Un tel dispositif présente donc l'avantage d'offrir une large accordabilité en longueur d'onde, typiquement de une à deux décades avec une même installation et la possibilité d'atteindre des longueurs d'onde allant de

l'infrarouge aux rayons X, performances difficilement réalisables avec un laser traditionnel. Le LEL permet aussi de produire de fortes puissances crêtes, des impulsions femtosecondes avec des taux de répétition variés. Le LEL est donc un outil remarquable pour réaliser un grand nombre d'expériences dans des domaines très variés, tels que, l'étude des cinétiques rapides et des phénomènes non linéaires. La largeur spectrale relative, de l'ordre de  $10^{-2}$  à  $10^{-4}$ , permet de réaliser des expériences de spectroscopie non linéaire.

L'inconvénient majeur d'un LEL réside dans son prix et sa taille. En effet, il nécessite l'installation d'un accélérateur de particules, des blindages de protection contre les rayonnements ionisants, des salles aménagées pour les utilisateurs et fonctionne entièrement sous vide; sa mise en place en laboratoire n'en est rendue que plus difficile. De plus, le gain du processus d'amplification étant inversement proportionnel au cube de l'énergie des électrons, l'obtention de l'effet laser présente plus de difficultés dans le domaine de l'ultra violet et encore davantage dans le domaine des X que pour les grandes longueurs d'onde.

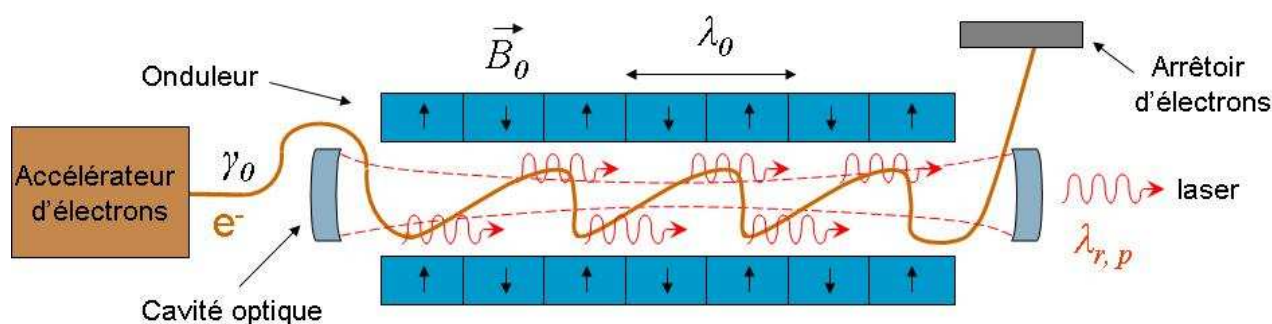


Figure 1.1 : Configuration Oscillateur. Coupe longitudinale. Vue de côté (tiré de la thèse de G. Lambert).

Les premiers LELs furent constitués d'un unique onduleur placé dans une cavité optique, configuration dite en « oscillateur » (Figure 1.1 [5]). Les capacités d'extension de ces LELs aux domaines VUV (« ultraviolet à vide ») et X sont limitées par le fait qu'il n'existe pas de matériau convenable pour les miroirs de la cavité optique dans ces plages spectrales de rayonnement. Plusieurs voies sont actuellement explorées avec des LELs

dépourvus de cavité optique où l'amplification se fait en un seul passage comme le mode « SASE » (Self Amplified Spontaneous Emission) [6] (Figure 1.2 [5]). Bien que le rayonnement SASE fournisse un faisceau de photons de luminosité très intense, ainsi qu'un haut degré de cohérence transverse, ses propriétés de cohérence temporelle sont limitées. En effet, en régime de SASE, la génération du bruit de rayonnement synchrotron induit une mise en paquets qui intervient aléatoirement, à différentes positions du paquet ; les profils temporel et spectral de la lumière rayonnée sont composés d'une série de sous structures en pics appelés « spikes » et présentent d'importantes fluctuations statistiques.

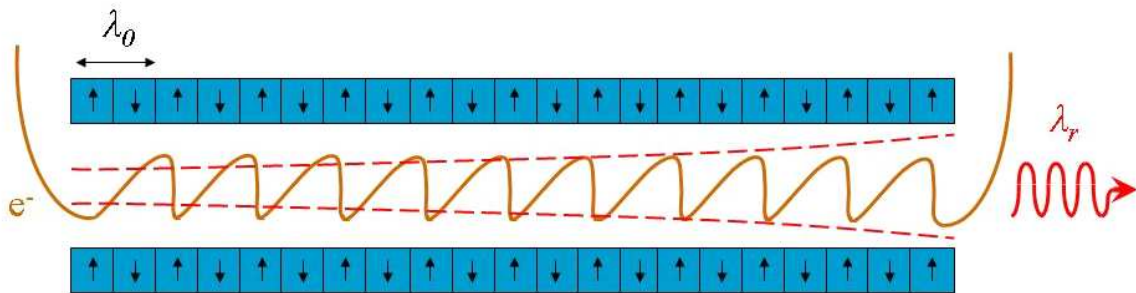


Figure 1.2 : Configuration SASE. Coupe longitudinale. Vue de côté.

En 2006, l'installation FLASH a fourni un rayonnement SASE de 70  $\mu$ J à 13,7 nm [7]. Très récemment une longueur d'onde de 6,5 nm [8] a même été atteinte ce qui constitue un pas très important vers l'obtention d'un laser à rayons X dans la « fenêtre de l'eau » (2,2 nm à 4,4 nm).

De nombreux autres projets de LELs, ayant pour but de générer du rayonnement SASE sont actuellement en construction : dans le domaine VUV, SPARC [9] (Sorgente Pulsata e Amplificata di Radiazione Coerente) en Italie et dans le domaine X, le XFEL japonais à SPring-8 [10], le XFEL européen à DESY [11], et LCLS (Linac Coherent Light Source) aux Etats-Unis [12] qui devrait produire un rayonnement dès 2009.

## 1.2 Les effets non linéaires : le rayonnement harmonique

Les effets non linéaires permettent de convertir un rayonnement de fréquence  $\omega$  en un rayonnement de fréquence multiple de  $\omega$  plus élevée :  $2\omega, 3\omega, \dots, n\omega$ . Pour obtenir un rayonnement dans la gamme de l’XUV, la méthode la plus généralement utilisée est de focaliser une impulsion laser infrarouge femtoseconde, intense et polarisée linéairement dans un gaz rare ou sur une cible solide. Le champ du laser est tel qu’il ionise la cible par effet tunnel. L’électron issu de cette ionisation peut se recombiner de façon radiative à son ion parent qui émet un photon très énergétique. De nombreuses études ont été réalisées ces dernières années sur la génération d’harmoniques [13, 14]. Certaines harmoniques ont même atteintes la gamme spectrale dite de la fenêtre de l’eau (2,2-4,4 nm) [15]. Mais pour ces courtes longueurs d’onde le rendement de conversion reste pour l’instant assez faible. Les harmoniques d’ordre élevé sont néanmoins optimisées pour des longueurs d’ondes comprises entre 40 nm et 15 nm. Sur cette plage de longueur d’onde, nous observons un large plateau sur lequel l’intensité des harmoniques reste quasi constante. Une des propriétés remarquables des harmoniques d’ordre élevé est qu’elles conservent les propriétés de cohérence et de polarisation de la source laser [16]. Le faisceau harmonique est donc polarisé et peut posséder une cohérence spatiale élevée et un front d’onde de qualité. De plus, la durée d’impulsion du faisceau harmonique est très brève, de l’ordre de quelques femtosecondes. La physique des harmoniques d’ordre élevé générées dans des gaz sera développée dans le chapitre 2.2.

En focalisant un laser intense à la surface d’une cible solide, il est aussi possible de générer des harmoniques d’ordre élevé d’un laser infrarouge. Ces harmoniques sont produites dans la direction spéculaire du laser infrarouge par réflexion non-linéaire sur un plasma à fort gradient de densité. Une interprétation de ce processus peut être la suivante : le champ laser produit une oscillation de la densité critique du plasma formé donnant lieu à une modulation de phase du faisceau réfléchi [17]. A la différence des harmoniques produites dans les gaz, des harmoniques paires et impaires sont produites et leur génération est très sensible au gradient de densité électronique du plasma produit. Des expériences récentes montrent que ce processus peut avoir une grande efficacité et peut donner lieu à la production d’un faisceau cohérent XUV de 1 à 10  $\mu\text{J}$  dans la gamme de 30-40 nm [18]. Un excellent contraste temporel de la chaîne laser IR est absolument nécessaire ce qui impose l’utilisation de dispositifs tels que des miroirs – plasma [19].

## 1.3 Les lasers dans le domaine XUV

Le principe de fonctionnement des lasers dans le domaine de l’XUV repose, comme celui des lasers émettant dans le visible et dans l’infrarouge, sur une inversion de population. Ici, elle aura lieu entre deux niveaux excités d’un ion d’un plasma créé par laser. Ainsi, le plasma va émettre en amplifiant son propre rayonnement. Nous disons alors que ce type de source fonctionne en régime d’amplification (par émission stimulée) de l’émission spontanée. Ce régime plus couramment appelé *ASE pour « amplification of spontaneous emission »* est historiquement le mode de fonctionnement des lasers XUV pompés par laser. Dans ce manuscrit, nous considérons le plasma créé en inversion de population, non pas comme la source elle-même, mais comme un amplificateur XUV, comme nous en trouvons sur les chaînes lasers de puissance dans la gamme infrarouge. Cet amplificateur aura pour mission d’amplifier, non pas « son propre bruit » comme c’est le cas en mode ASE, mais une source cohérente externe dite « *d’injection* » qui sera ici une source d’harmonique d’ordre élevé.

Avant de rentrer dans le détail, nous présenterons les différents schémas d’inversion de population dans les plasma-lasers qui ont permis expérimentalement d’obtenir des inversions de population dans le domaine XUV. Ensuite, nous présenterons brièvement un état de l’art des différents lasers XUV collisionnels fonctionnant en mode ASE, sans rentrer dans le détail sur la physique de ces sources qui sera présentée dans le chapitre suivant.

### 1.3.1 Mécanisme de pompage

#### 1.3.1.1 Schéma par recombinaison

Le schéma par recombinaison, proposé en 1964 [20], a été le premier schéma laser XUV à être étudié de façon intensive [21, 22, 23, 24]. Le schéma du principe de pompage par recombinaison est présenté sur la Figure 1.3. L’idée de base est de créer un plasma suffisamment froid et dense pour que des processus à trois corps dominent la recombinaison et peuplent fortement les niveaux supérieurs de l’ion considéré. Dans ces

conditions, l'inversion de population est créée pendant la cascade radiative collisionnelle qui suit la recombinaison. Les taux de recombinaison à trois corps variant comme  $R_{col} \propto N_e^3 / T_e$ , où  $T_e$  et  $N_e$  sont respectivement la température et la densité électronique, l'obtention d'un plasma de faible température et de forte densité électronique est la condition nécessaire à la réalisation d'une importante inversion de population. L'effet laser se produit pour des transitions du type  $\Delta n = 1$  et  $\Delta n = 2$  dans les ions de  $Z$  légers ( $6 \leq Z \leq 17$ ) possédant un électron en sous-couche externe (lithiumoïde ou hydrogéoïde).

Une des approches consiste à créer un plasma chaud par l'interaction d'une impulsion laser et d'une cible massive. C'est pendant la phase de refroidissement adiabatique du plasma que se produit l'inversion de population. Pour refroidir le plasma il suffit de le laisser se détendre dans tout l'espace. L'expérience la plus probante a été réalisée à l'aide d'un laser femtosecondes. Il s'agit d'un laser XUV dit Optical Field Ionization (OFI) pour ionisation par champ, en recombinaison réalisée sur la raie  $Ly_\alpha$  du lithium hydrogéoïde à 13,5 nm. Un gain de  $20 \text{ cm}^{-1}$  a été mesuré sur une colonne de 2 mm [25]. Cependant, le chauffage des électrons par des effets non linéaires limite pour l'instant l'efficacité de ce schéma [26].

Même si le schéma de pompage par recombinaison devrait permettre d'atteindre des longueurs d'onde inférieures à 1 nm, les produits gain-longueur mesurés restent faibles. C'est pour cette raison que les recherches se sont tournées vers un autre schéma de pompage plus prometteur : le schéma par pompage collisionnel.

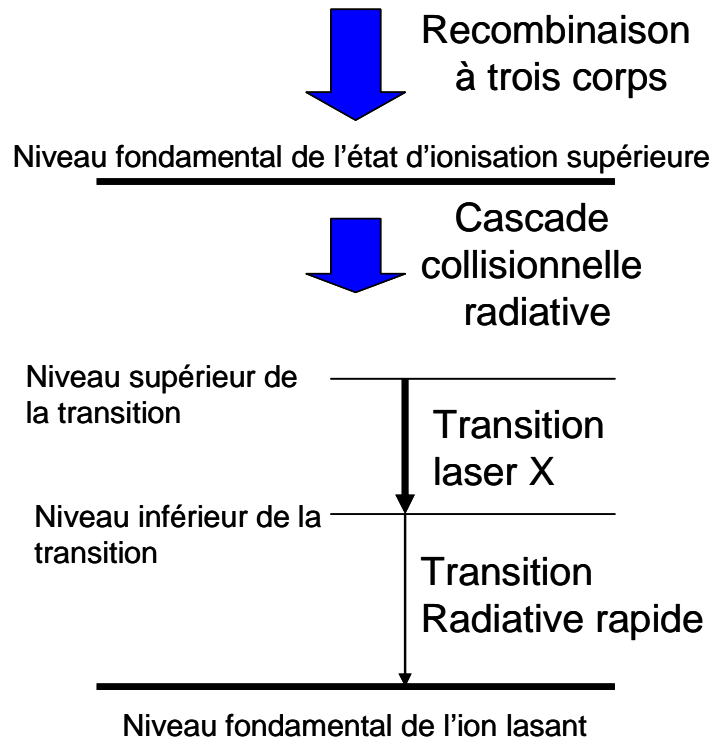


Figure 1.3 : Principe du schéma de pompage par recombinaison.

#### 1.3.1.2 Schéma collisionnel

Ce schéma a été proposé en 1975 [27] et il a fallu attendre les travaux de D. Matthews *et al.* en 1985 pour observer une forte amplification [28]. Le principe est illustré sur la Figure 1.4. Certains niveaux excités de l'ion lasant sont peuplés par excitations collisionnelles, à partir du niveau fondamental qui est ici le réservoir de population. La désexcitation du niveau supérieur de la transition vers le niveau fondamental est interdite, alors que celle du niveau inférieur de la transition vers le fondamental est très probable. En conséquence, une inversion de population peut être obtenue entre ces niveaux.



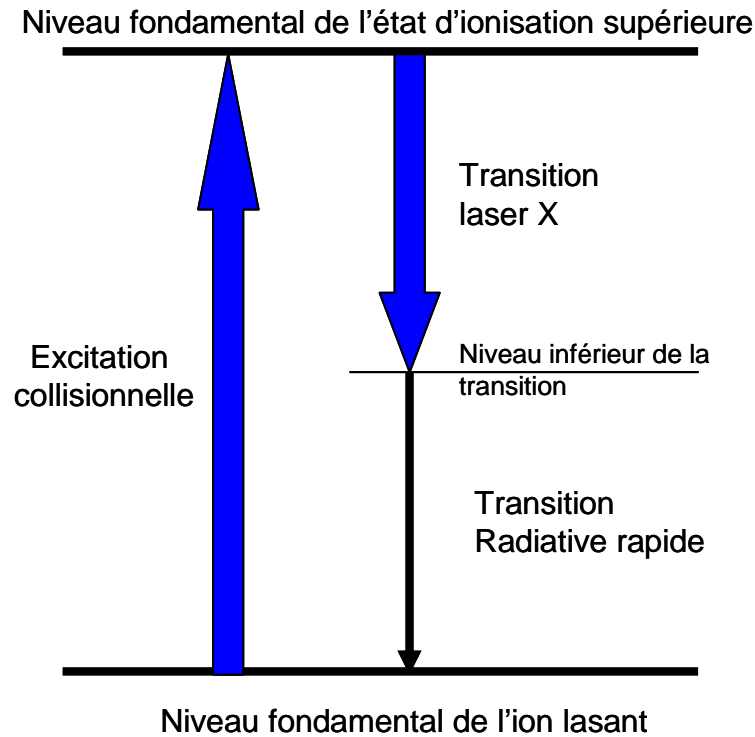


Figure 1.4 : Principe du schéma de pompage collisionnel.

L'énergie moyenne des électrons libres doit être supérieure ou égale à l'énergie du niveau supérieur pour réaliser le pompage des électrons de l'ion vers le niveau supérieur. Egalement, plus la température et la densité électronique seront élevées, plus la probabilité de collisions sera élevée et plus le processus de pompage sera efficace ; la probabilité de collision entre les ions et les électrons pour le peuplement du niveau supérieur pouvant s'écrire :

$$P_{exc} \propto \frac{n_e}{kT_e} \exp\left(-\frac{E_{exc}}{kT_e}\right)$$

où  $T_e$  est la température électrique du plasma et  $E_{exc}$  l'énergie d'excitation du niveau fondamental de l'ion au niveau excité.

Les ions néonoïdes et nickeloïdes mais aussi palladiumoïdes ont montré des possibilités pour le schéma collisionnel. En effet, les ions néonoïdes et nickeloïdes, possédant des couches et des sous-couches complètes, sont très stables sur une large gamme de densités et de températures. L'inversion de population se produira entre les niveaux de la transition 3p-3s pour les ions néonoïdes, 4p-4d pour les ions nickeloïdes et 5p-5d pour les ions palladiumoïdes. La gamme spectrale couverte est très large et s'étale de 3 à 60 nm comme

le montre la Figure 1.5 pour les ions néonoïdes et nickeloïdes. Il faut souligner que les ions nickeloïdes sont mieux adaptés pour atteindre de plus courtes longueurs d'onde [29].

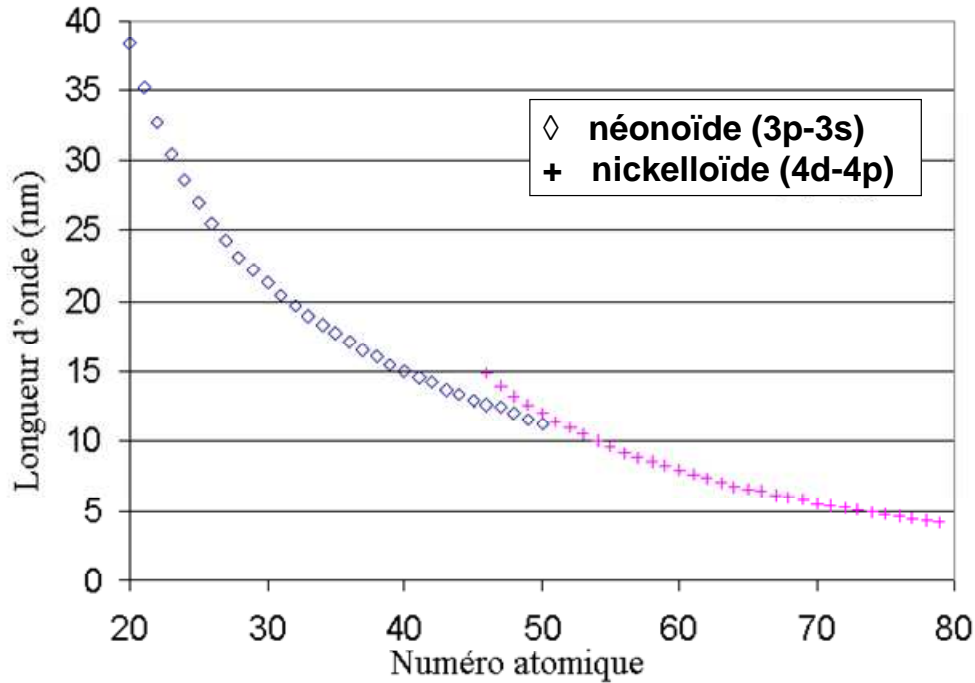


Figure 1.5 : Longueur d'onde des lasers XUV en fonction du numéro atomique pour les ions néonoïdes (losange) et les ions nickeloïdes (croix).

### 1.3.2 Etat de l'art des lasers XUV par excitation collisionnelle

Les premières expériences sur les lasers XUV ont commencé sur des installations lasers à longue durée d'impulsion (nanoseconde). Ces lasers XUV sont plus communément appelés **lasers XUV quasi-stationnaires (QSS)**. Ce type de laser est produit par la focalisation d'un laser infrarouge, d'une énergie de plusieurs centaines de joules et d'une durée d'impulsion de quelques centaines de picosecondes, sur une cible solide en une ligne de quelques centimètres de long (voir Figure 1.6). L'émission laser XUV est émise de part et d'autre des extrémités de la colonne de plasma. Ce type de laser a été utilisé pour de nombreuses applications [30, 31, 32] et a permis d'atteindre la plus courte longueur d'onde en régime saturé [33]. Pour augmenter les performances des lasers XUV quasi-

stationnaires, la présence d'une pré-impulsion de plus faible énergie peut être utilisée. Cette pré-impulsion crée un plasma faiblement ionisé permettant d'obtenir un gradient de densité électronique plus faible [34] et ainsi améliore l'absorption de l'impulsion principale et réduit la réfraction du rayonnement amplifié. Le seul laser XUV QSS en fonctionnement aujourd'hui est celui du PALS (Prague Asterix Laser System) en République Tchèque. C'est un laser à zinc néonoïde qui émet à 21,2 nm et fonctionne avec une demi-cavité XUV [35]. Le miroir utilisé pour cette demi-cavité est un miroir multicouche placé à une extrémité de la colonne de plasma. Cette configuration a permis d'augmenter considérablement l'énergie du laser mais aussi d'améliorer les qualités optiques du faisceau [36]. Le laser XUV ainsi obtenu délivre quelques mJ par tir pour une durée d'impulsion d'environ 100 ps.

Les lasers XUV QSS sont actuellement les sources XUV cohérentes les plus énergétiques. Cependant, ils nécessitent des installations laser de très grande taille à cause de l'énergie nécessaire pour créer le plasma. De plus, ils fonctionnent avec une cadence très faible (1 tir toutes les 30 minutes). Avec l'émergence des lasers de puissances capable de délivrer des impulsions brèves ultra-intenses, les lasers XUV à pompage transitoire sont apparus.

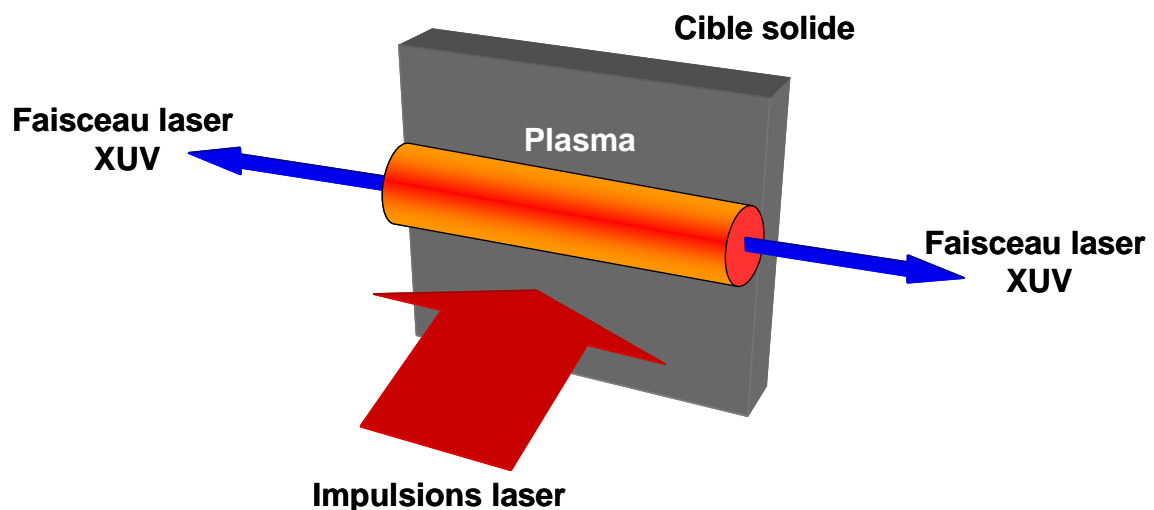


Figure 1.6 : Schéma de principe du laser quasi-stationnaire pompé par laser.

Le *pompage dit « transitoire »* a permis de réduire sensiblement l'énergie nécessaire au pompage. Il fonctionne de la manière suivante : tout d'abord un laser possédant une durée d'impulsion longue (quelques centaines de picosecondes) crée un plasma contenant des ions néonoïdes ou nickeloïdes. Ensuite, une deuxième impulsion de durée plus courte (quelques picosecondes) irradie ce plasma préformé ce qui a pour effet de chauffer les électrons et entraîne par collisions l'excitation des électrons du niveau fondamental vers le niveau supérieur de la transition laser. Le laser XUV transitoire fut proposé en 1963 par Afansiev et Shlyaptsev [37] et démontré expérimentalement pour la première fois en 1995 par P. Nickles et al. [38]. Le régime de saturation sera atteint trois ans plus tard dans du germanium néonoïde en utilisant une onde inhomogène [39]. En effet, cette configuration est nécessaire pour que les photons émis au début de la colonne soient amplifiés sur toute la longueur du milieu. Le laser XUV transitoire présente de nombreux avantages comme celui de ne pas nécessiter beaucoup d'énergie (quelques joules) en comparaison avec les lasers XUV QSS. Cela permet d'utiliser des chaînes lasers de plus petites dimensions avec des cadences de tir plus élevées (autour de 0,1 Hz). Une des propriétés remarquables de ces lasers est leur faible durée d'impulsion ; une durée d'impulsion de 2 ps a été mesurée pour un laser transitoire à 13,9 nm dans de l'argent nickeloïde [40, 41].

Plus récemment ce schéma transitoire a été transposé en incidence rasante [42]. L'impulsion de pompe est focalisée en ligne dans le pré-plasma avec un angle d'incidence très élevé (i.e. rasant à la surface de la cible). Cet arrangement géométrique permet d'utiliser la réfraction de l'impulsion courte dans des régions de densité sous critique et ainsi d'augmenter le couplage entre la pompe et le pré-plasma. Cette technique, toujours basée sur le schéma transitoire collisionnel, est dénommée GRIP (Grazing Incidence Pumping) [43, 44].

Les énergies de pompe relativement modestes, nécessaires au fonctionnement de ce type de lasers XUV, permettent la réalisation d'installations de petites dimensions et fonctionnant à des cadences allant jusqu'à 10 Hz. Un projet de l'Université Paris XI dédié aux lasers XUV et nommé « LASERIX » est en cours de construction. Ce laser XUV qui devrait fonctionner principalement en schéma transitoire devrait être fonctionnel en 2009-2010.

**Le schéma dit d'ionisation par champ ou OFI** pour « Optical Field Ionisation » fait l'objet de cette thèse et nous le décrirons dans le détail dans le chapitre suivant. En deux mots, il repose sur la création d'une inversion de population dans un gaz ionisé par un faisceau laser de haute intensité ( $> 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ ) et de faible durée d'impulsion (30 fs). L'ionisation par le champ est possible si le champ électrique appliqué par le champ laser est suffisamment intense pour supprimer la barrière coulombienne et ainsi libérer les électrons. Ce sont ensuite ces mêmes électrons, issus de l'ionisation, qui participeront au pompage collisionnel de la transition laser. C'est en 1994 que ce schéma d'inversion de population a été proposé pour trois ions différents : dans du Xénon palladiumoïde, du Krypton nickeloïde et de l'Argon néonoïde [45]. Les longueurs d'onde et les transitions de ces différents lasers OFI sont présentées dans le Tableau 1-1.

Ion	Transition	Longueur d'onde
Xénon palladiumoïde	5d-5p	41,8 nm
Krypton nickeloïde	4d-4p	32,8 nm
Argon néonoïde	3p-3s	46,9 nm

Tableau 1-1 : Transitions et longueurs d'onde des différents lasers OFI.

Historiquement, c'est le même groupe de recherche qui observa pour la première fois une émission laser dans le xénon palladiumoïde [46]. Malgré de nombreuses tentatives à travers le monde, cette expérience n'a pu être reproduite que 5 ans plus tard, au LOA ; le régime de saturation a été atteint pour la première fois dans le xénon palladiomoïde à 41,8 nm [47] et dans le krypton nickeloïde à 32,8 nm [48].

Une grande partie du travail qui a suivi a été consacrée à l'étude des paramètres influents sur la création du milieu amplificateur. Ainsi, il a été mis en évidence le rôle crucial de la propagation du laser de pompe sur la création d'un milieu amplificateur long et performant. En effet, il devient évident que le paramètre clé est de pouvoir maintenir une intensité suffisante permettant d'assurer la création de l'ion lasant sur la distance la plus

longue possible. Les qualités amplificatrices du plasma dépendent essentiellement, quant à elles, de la pression du gaz et de la polarisation du laser. Les études menées ont aussi permis de montrer que les plasmas formés sont caractérisés par un très fort gain et que ce type de source peut fonctionner avec une cadence de 10 Hz [49]. D'autres études, basées sur l'utilisation de guides d'onde, ont permis d'accroître de façon importante les dimensions du plasma amplificateur de ce type de lasers et, par conséquent, d'améliorer sensiblement ses performances [50]. Il est à noter que le profil spatial présente des inhomogénéités qui sont la conséquence d'une bonne cohérence temporelle mais d'une faible cohérence spatiale [41].

Comme nous le verrons par la suite, les amplificateurs OFI sont relativement bien adaptés aux expériences d'injection d'harmoniques. Ils sont peu réfractifs et sont parfaitement synchronisables avec la source harmonique d'injection qui n'utilise qu'une petite partie du laser de pompe. Egalement, la superposition de la source harmonique sur la zone de gain est parfaitement contrôlable.

Finalement, nous ne pouvons pas faire un état de l'art sur les lasers XUV sans parler des *lasers par décharge capillaire*. Le plasma est ici obtenu par des décharges électriques de plusieurs kA avec un temps de montée de quelques dizaines de nanosecondes qui ionise un gaz confiné dans un capillaire. Le premier laser XUV produit par décharge électrique dans un plasma a été démontré par J.Rocca en 1994 [51, 52]. Ce type de laser permet d'atteindre des taux de répétition très élevés (4 Hz) et délivre des impulsions de quelques millijoules. Cependant ce type de laser ne délivre, pour le moment, que des impulsions de longues durées, autour de 1 ns, et reste limité à de grandes longueurs d'onde ( $\lambda > 47$  nm). Néanmoins, la compacité du système de pompage, l'importante énergie par impulsion et la cadence élevée des tirs en font un laser XUV tout à fait remarquable et singulier.

## **1.4 Les sources XUV injectées par harmonique**

Les sources harmoniques, du fait de leur compacité, leur brièveté et leurs qualités spatiales, sont de bonnes candidates pour servir d'injecteurs pour d'autres types de sources qui fonctionnent sur l'amplification de leur propre bruit (laser-plasma ASE ou LEL en SASE). Si les motivations ne sont pas complètement les mêmes, la technique d'injection d'harmonique dans les plasma-lasers et dans les lasers à électrons libres est aujourd'hui devenue incontournable et tend à se généraliser sur les différentes installations.

### **1.4.1 Injection d'harmonique dans un laser XUV**

L'injection d'un faisceau d'harmoniques d'ordre élevé dans un plasma de laser XUV a été proposée et démontrée pour la première fois en 1995 [53]. Cette technique est une analogie directe du schéma « oscillateur-amplificateur » couramment utilisée pour les chaînes laser de forte énergie. Ici, il s'agit de combiner la courte durée et les qualités optiques (polarisation linéaire, cohérences spatiale et temporelle élevées et un front d'onde de qualité) du faisceau harmonique utilisé en tant qu'injecteur avec les forts gains contenus dans les plasmas de laser XUV.

L'idée fut reprise au LOA en 2004 [1] et adaptée à un amplificateur OFI collisionnel. La source ainsi produite conserve les qualités de cohérence, de divergence et de polarisation du faisceau harmonique injecté et un facteur d'amplification de l'ordre de 200 a été mesuré. Par la suite, cette géométrie a été adaptée avec succès aux amplificateurs plasma en régime transitoire à 32,6 nm et 13,2 nm [54, 55, 56].

Comme nous le montrerons tout au long de ce manuscrit, les avantages de cette méthode et les améliorations de la source qui en découlent font que cette géométrie tend à se généraliser sur toutes les installations visant à réaliser des lasers XUV par laser-plasma.

### **1.4.2 Injection d'harmoniques dans un LEL**

Le succès de l'injection d'harmoniques sur plasma-laser a fortement inspiré et motivé la transposition de ce schéma sur le LEL. En effet, l'émission des LELs, bien que présentant de fortes brillances, ne possède qu'une cohérence longitudinale partielle. Les profils temporel et spectral sont composés d'une série de pics, appelés « spikes » qui présentent d'importantes fluctuations. L'injection dans un LEL de la 5<sup>ème</sup> harmonique (160 nm) d'un laser Ti: Sa (800 nm, 10 Hz, 100 fs) produite dans une cellule de gaz à montré une forte amplification cohérente. Ce phénomène spectaculaire s'accompagne de la génération d'Harmoniques Non Linéaires LELs (HNL) intenses et cohérentes à 54 nm et 32 nm [5]. L'expérience a été réalisée sur le prototype de l'accélérateur SCSS (source SASE compacte de SPring-8, Japon). Cette installation est principalement constituée d'un canon à électrons à cathode thermo-ionique, d'un LINAC et d'un onduleur sous vide (2 sections de 4,5 m de long), sur lequel la source externe harmonique est superposée transversalement, spectralement et temporellement avec le faisceau d'électrons (150 MeV, 10 Hz, 1 ps). Avec une seule section d'onduleur, le rayonnement à 160 nm en mode injecté atteint une intensité de trois ordres de grandeur supérieure à celle obtenue sans injection, et présente une distribution spectrale quasi-Gaussienne. De plus, la longueur de saturation du LEL est deux fois plus courte. Vu le faible niveau d'injection requis, une telle amplification couplée à des schémas HNL permettrait de générer des rayonnements X totalement cohérents jusqu'à la « fenêtre de l'eau ».



---

# **Chapitre 2 : Physique des lasers XUV**

## **OFI en mode injecté**

Ce chapitre a pour but de présenter les bases physiques pour la réalisation d'un laser XUV OFI en mode injecté. Dans un premier temps, nous nous intéresserons à l'interaction laser-gaz en champ fort avant de décrire les processus impliqués dans la génération d'harmoniques d'ordre élevé et les propriétés de ce type de source. Ensuite, nous décrirons comment fonctionne l'amplificateur à krypton nickelé à 32,8 nm en appuyant sur les spécificités propres au schéma dit OFI. Nous en profiterons pour présenter les différents codes numériques utilisés pour expliquer les résultats expérimentaux.

### **2.1 Interaction laser-gaz en champ fort**

#### **2.1.1 Atomes en champ intense**

La production des sources XUV que nous décrivons dans ce manuscrit est le résultat de l'interaction d'un faisceau laser intense avec un milieu gazeux.

Le champ coulombien « vu » par l'électron d'un atome d'hydrogène sur l'état fondamental est approximativement égal à  $5.10^9$  V/cm. La relation entre l'intensité laser et le champ électrique dans le cas d'une polarisation linéaire s'écrit :

$$I = \frac{1}{2} \epsilon_0 c E^2 \quad (1)$$

où  $\epsilon_0$  est la permittivité du vide et  $c$  la vitesse de la lumière.

Le champ coulombien dans un atome d'hydrogène correspond alors à un éclairement de  $3,5 \cdot 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ . Cette valeur est souvent considérée comme « l'unité atomique d'intensité ».

Avec le développement des lasers de haute puissance, le domaine de la physique en champ fort a rapidement évolué et il est maintenant possible d'exposer des atomes à des champs électromagnétique laser qui sont bien au dessus des champs coulombiens des atomes eux-mêmes. Dans la région où le champ laser est comparable au champ de liaison des électrons dans les atomes, de nombreux phénomènes influant sur les processus d'ionisation ont été étudiés de façon intensive. Les sources XUV étudiées dans ce manuscrit étant produites dans des milieux gazeux ionisés par les lasers intenses, nous nous attacherons dans une première partie à décrire les processus d'ionisation impliqués.

## 2.1.2 Ionisation

### 2.1.2.1 Les différents types d'ionisation

Selon l'éclairement du laser, trois différents types de mécanismes d'ionisation peuvent se produire : l'ionisation multiphotonique, l'ionisation par effet tunnel et l'ionisation par suppression de barrière.

Pour un éclairement relativement faible (typiquement inférieur à  $10^{13} \text{ W/cm}^2$ ), **l'ionisation multiphotonique** prédomine [57]. Ce processus, illustré sur la Figure 2.1 se réalise si l'atome ou l'ion absorbe simultanément un nombre suffisant de photons pour lui permettre d'acquérir une énergie égale à son énergie de liaison. Le taux d'ionisation sera alors proportionnel à l'intensité du laser.

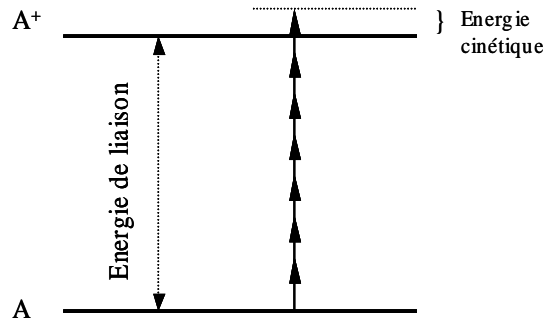


Figure 2.1 : Représentation schématique de l'ionisation multiphotonique d'un atome en absorbant sept photons.

**L'ionisation par effet tunnel** est prédominante pour des éclaircements supérieurs à  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>. La barrière de potentiel à franchir pour ioniser l'atome est abaissée par le champ électromagnétique du laser infra-rouge (voir Figure 2.2). Cette barrière peut être suffisamment basse au moment du maximum de l'impulsion pour que la probabilité de franchir cette barrière par effet tunnel devienne non nulle. Deux conditions sont donc nécessaires pour l'ionisation par effet tunnel : il faut un fort éclairciment pour perturber le potentiel de l'atome ainsi qu'un temps de traversée de l'électron suffisamment court devant la période de l'oscillation laser.

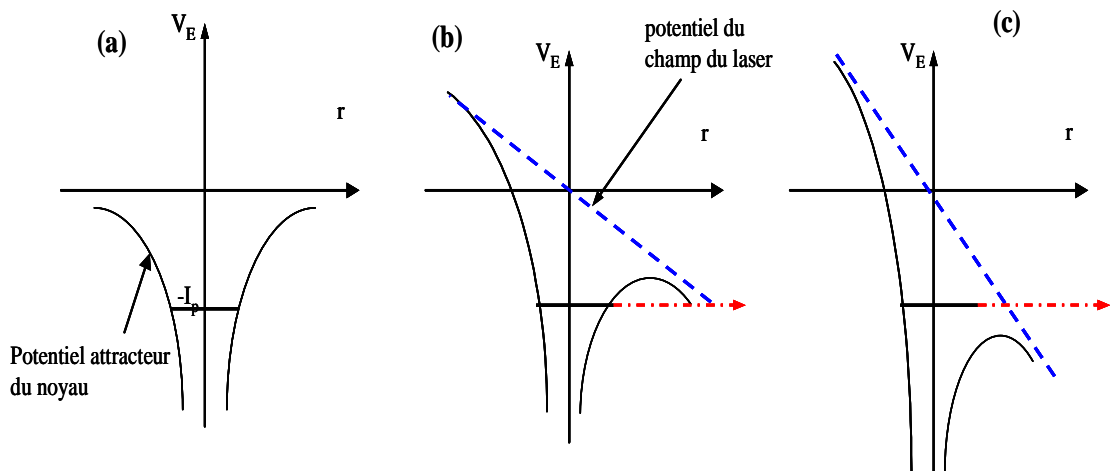


Figure 2.2: Variation du potentiel liant l'électron à son atome sous l'effet du champ du laser. (a) au repos : pas de champ appliqué sur l'atome, l'électron est piégé dans un puits de potentiel. (b) ionisation tunnel : l'électron franchit la barrière de potentiel. (c) Suppression de la barrière : l'électron n'est soumis à aucun potentiel de l'atome et se trouve dans le continuum.

Pour des éclairagements encore plus importants, le champ du laser est bien plus élevé que le champ qui lie l'électron au noyau. L'électron sera ionisé extrêmement facilement. Nous parlons ici du **régime de suppression de barrière** ou encore modèle BSI « Barrier Suppression Ionisation ». L'éclairement nécessaire pour supprimer la barrière de potentiel se calcule avec l'équation suivante, selon que l'on soit en polarisation circulaire (Cir) ou linéaire (Lin) :

$$I_{BSI} = A \frac{I_p^4}{Z^2} \left[ W / cm^2 \right] \quad (2)$$

Avec  $A = 3,8.10^9$  pour une polarisation linéaire et  $A=8.10^9$  pour une polarisation circulaire.

où  $I_{BSI}$  est l'éclairement de suppression de barrière,  $I_p$  le potentiel d'ionisation, exprimé en eV, de l'atome considéré et  $Z$  la charge de l'ion obtenu.

A partir de cette équation et des potentiels d'ionisation calculés (Tableau 2-1) pour le xénon et le krypton, nous présentons sur la Figure 2.3 l'éclairement nécessaire pour obtenir les différents degrés d'ionisation des deux gaz jusqu'à la dixième ionisation. Dans le contexte qui nous intéresse ici, c'est-à-dire ioniser huit fois le krypton, il faut à la fois un éclairement laser de l'ordre de  $1,36.10^{17} W.cm^{-2}$  et une polarisation circulaire. Nous expliquerons par la suite l'influence de la polarisation du laser de pompe sur la création du milieu amplificateur.

Egalement, nous observons dans les deux cas, un écart d'intensité important entre la huitième et la neuvième ionisation, ce qui illustre bien la relative stabilité des ions lasants que nous souhaitons produire. En effet, entre l'intensité nécessaire pour ioniser huit fois le xénon ou le krypton et celle pour atteindre la neuvième ionisation, il existe au moins un facteur 5 pour le xénon et 9 pour le krypton.

Par sa simplicité, le modèle BSI constitue une première approximation permettant d'estimer l'éclairement nécessaire pour créer une espèce ionique bien définie. Toutefois, il surestime l'éclairement nécessaire pour atteindre le degré d'ionisation voulu et, par conséquent, l'énergie cinétique des électrons. Nous verrons que cette énergie dépend de l'intensité au moment de l'ionisation. Pour obtenir des valeurs plus réalistes, il faut donc calculer les taux d'ionisation par effet tunnel.

Etat de charge	Kr	Xe
1	$4p^6$ 14	$5p^6$ 12,13
2	$4p^5$ 24,36	$5p^5$ 21,21
3	$4p^4$ 36,95	$5p^4$ 32,12
4	$4p^3$ 53	$5p^3$ 38,3
5	$4p^2$ 65	$5p^2$ 51,5
6	$4p^1$ 78	$5p^1$ 64,2
7	$4s^2$ 111	$5s^2$ 91,4
8	$4s^1$ 123	$5s^1$ 106,6
9	$3d^{10}$ 230,9	$4d^{10}$ 175,2
10	$3d^9$ 275	$4d^9$ 196,2

Tableau 2-1 : Potentiel d'ionisation (eV) des dix premiers états d'ionisation dans le cas du krypton et du xénon.

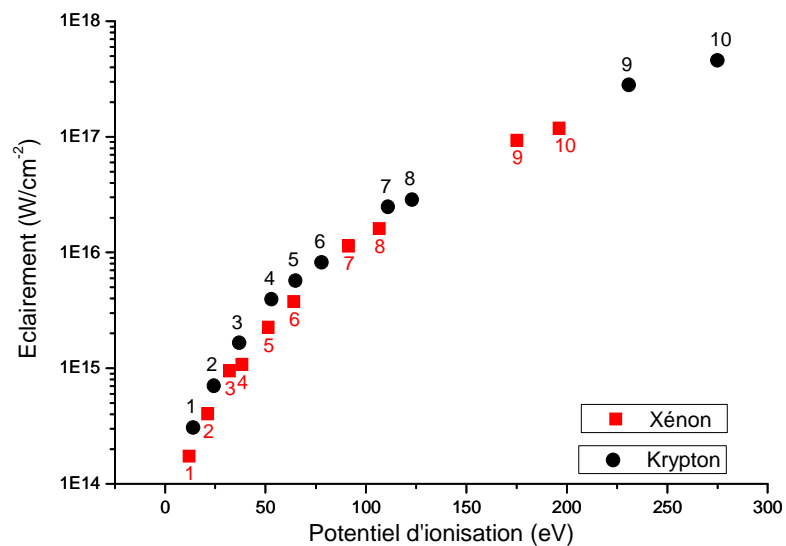


Figure 2.3: Eclairement nécessaire pour obtenir les différents degrés d'ionisation dans le krypton (rond noir) et le xénon (carré rouge).

### 2.1.2.2 Paramètre de Keldysh

Le paramètre de Keldysh [58] permet de savoir quel est, parmi l'ionisation multiphotonique et l'ionisation par effet tunnel, le régime qui prédomine. Ce paramètre s'écrit :

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}} \quad (3)$$

avec

$$U_p = \frac{e^2 E^2}{4m\omega^2} \quad (4)$$

où  $U_p$  est le potentiel pondéromoteur du laser correspondant à l'oscillation d'un électron de masse  $m$ , de charge  $q$ , soumis à un champ électrique  $E$  de pulsation  $\omega$  et  $I_p$  le potentiel de première ionisation du gaz.

Ce paramètre sans dimension  $\gamma$  permet de comparer le potentiel d'ionisation de l'électron ( $I_p$ ) et le potentiel pondéromoteur du laser ( $U_p$ ). Si  $\gamma \gg 1$ , le potentiel atomique domine le potentiel laser et, par conséquent, l'ionisation sera de nature multiphotonique. Dans le cas contraire, si  $\gamma \ll 1$ , le champ coulombien sera modifié par le champ du laser et, dans ce cas, le processus d'ionisation par effet tunnel sera prédominant.

### 2.1.2.3 Taux d'ionisation tunnel

Pour mieux comprendre ces différents phénomènes d'ionisation, il est important de calculer les taux d'ionisation. La formule la plus souvent utilisée pour les gaz rares, tel le krypton, est celle dite « ADK » pour « Ammosov, Delone, Krainov » [59]. Le calcul est relativement complexe à cause de l'utilisation de potentiels issus de la méthode du défaut quantique adaptée au cas des atomes lourds. La dépendance des nombres quantiques  $l, m, n$  pouvant varier d'un auteur à un autre, il est précisé que les taux ADK qui seront utilisés par la suite sont issus de l'article de Delone *et Al.* [60]. Ces valeurs corrigées des taux ADK sont données en polarisation linéaire et surtout éliminent la dépendance problématique en  $l, m$  et  $n$ . La formule pour calculer ces taux s'écrit alors :

$$W_{lin} = \sqrt{\frac{3n^* E}{\pi Z^3}} \frac{E D^2}{8\pi Z} \exp\left(-\frac{2Z^3}{3n^* E}\right) \quad (5)$$

avec  $n^* = \frac{Z}{\sqrt{2I_p}}$  et  $D = \left(\frac{4e Z^3}{E n^{*4}}\right)^{n^*}$  (6)

$Z$  est la charge de l'ion produit,  $n^*$  le nombre quantique effectif principal et  $E$  est l'amplitude du champ laser reliée à l'intensité par :

$$E(V/m) = \sqrt{8\pi \cdot 10^{-7} c I(W/m^2)} \quad (7)$$

Le passage du taux d'ionisation linéaire à celui du taux d'ionisation circulaire se fait par la formule suivante :

$$W_{circ} = W_{lin} \sqrt{\frac{\pi E_0}{3E}} \quad (8)$$

Les taux ADK permettent de calculer la probabilité d'ionisation d'un atome soumis à une impulsion laser de durée et d'intensité fixées. Les équations d'évolution des populations atomiques et ioniques sont données par :

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_0(t)}{dt} &= -W_0(t)\rho_0(t) \\ \frac{d\rho_1(t)}{dt} &= -W_1(t)\rho_1(t) + W_0(t)\rho_0(t) \\ &\dots\dots\dots \\ \frac{d\rho_i(t)}{dt} &= -W_i(t)\rho_i(t) + W_{i-1}(t)\rho_{i-1}(t) \end{aligned} \quad (9)$$

$W_i$  et  $\rho_i$  sont respectivement les taux d'ionisation et la densité ionique d'un atome  $i$  fois ionisé.

L'ionisation est très rapide pour les plasmas créés par des impulsions laser femtosecondes. Quand l'éclairement du laser dépasse  $10^{16} \text{ W/cm}^2$ , l'ionisation s'effectue sur le front montant de l'impulsion. La Figure 2.4 nous montre l'évolution de l'état de charge d'un atome de krypton lors de son interaction avec un laser d'une durée d'impulsion de 30 fs (à mi-hauteur) et un éclairement maximal égal à  $1.10^{17} \text{ W/cm}^2$ .



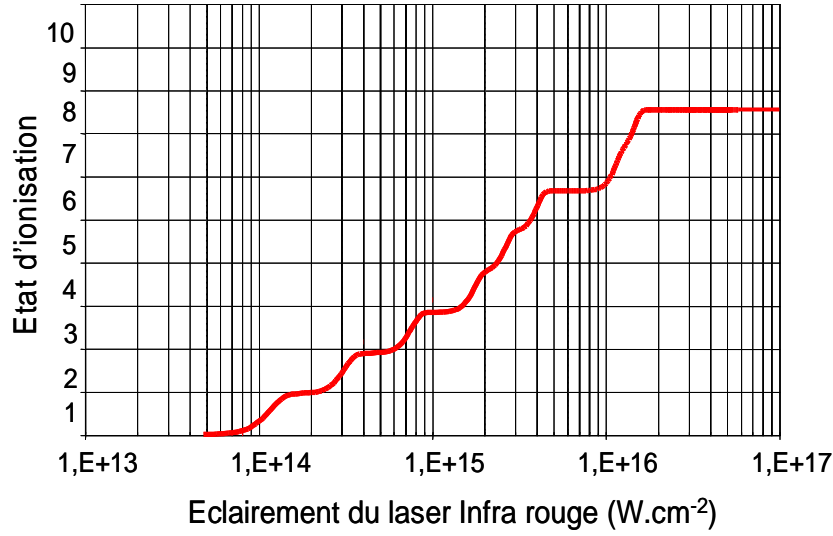


Figure 2.4 : Evolution de l'état de charge du krypton en fonction de l'éclairement du laser infra rouge.

### 2.1.3 Influence de la polarisation sur la distribution énergétique des électrons

Au cours de l'ionisation, l'électron libéré peut acquérir une énergie supérieure à l'énergie suffisante pour se détacher de l'atome (supérieure à son énergie de liaison). L'ionisation est alors au dessus du seuil de liaison plus communément appelé « ATI » pour « Above Threshold Ionisation ». L'électron est soumis au champ électrique  $E$  du laser infrarouge d'intensité  $I$  qui s'écrit pour une polarisation quelconque sous la forme :

$$E = E_{0x} \cos(\omega t)x + E_{0y} \sin(\omega t)y \quad (10)$$

avec

$$E_{0x} = \sqrt{\frac{2I\phi}{\epsilon_0 c}} \quad E_{0y} = \sqrt{\frac{2I(1-\phi)}{\epsilon_0 c}} \quad (11)$$

$\phi$  correspond à la polarisation du champ :  $\phi = 0$  pour une polarisation linéaire et  $\phi = 1/2$  pour une polarisation circulaire. L'amplitude du champ peut donc s'écrire comme suit :

$$E = E_0 \sqrt{\frac{1}{2} + \left(\phi - \frac{1}{2}\right) \cos(2\omega t)} \quad (12)$$

En considérant que l'enveloppe temporelle qui génère l'impulsion est lentement variable devant l'oscillation du champ électrique c'est-à-dire que nous considérons  $E_0$  comme une

constante, nous pouvons déterminer la vitesse des électrons et donc leur énergie cinétique en négligeant les effets magnétiques.

$$E_c(t) = \frac{e^2 E_0^2}{2m\omega^2} (\phi \cos^2(\omega t) + (1-\phi) \sin^2(\omega t)) \quad (13)$$

L'énergie cinétique des électrons s'écrit de deux façons, selon que nous soyons en polarisation circulaire ou en polarisation linéaire.

$$E_c(t) = \frac{e^2 E_0^2}{2m\omega^2} \sin^2(\omega t) \quad \phi = 0 \text{ (Polarisation linéaire)} \quad (14)$$

$$E_c(t) = \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega^2} \quad \phi = 1/2 \text{ (Polarisation circulaire)}$$

Comme le montre l'équation (14), le taux d'ionisation est maximal en polarisation linéaire, lorsque  $E(t)$  est maximal, c'est à dire  $\omega t = 0 [\pi]$ . Or, à cet instant, l'énergie cinétique des électrons est égale à zéro. En revanche, en polarisation circulaire, l'énergie cinétique est presque constante sur tout le cycle optique.  $E_0$  est fonction du temps, la valeur de l'énergie cinétique dépend donc du moment d'ionisation. La Figure 2.5 montre la distribution en énergie des électrons pour différents états de polarisation calculée pour un éclairement du laser infrarouge égal à  $10^{17} \text{ W/cm}^2$ . Cet éclairement permet d'obtenir une population majoritaire de krypton ionisé 8 fois dans la tache focale du faisceau laser. L'énergie cinétique des électrons ionisés par effet tunnel est marquée, dans le cas d'une polarisation circulaire, par une distribution continue comprise entre 0 et 2000 eV environ. La distribution autour de ces énergies moyennes n'est aucunement maxwellienne et la notion de température perd son sens avec ce type de distribution à plusieurs maxima. Par ailleurs, la distribution des énergies cinétiques correspond à celle d'un plasma figé après le passage de l'impulsion. Cependant elle varie peu pendant les quelques picosecondes (ps) qui succéderont à la création du plasma, moment où, comme nous le verrons par la suite, les gains seront les plus forts.

Pour favoriser l'excitation collisionnelle de l'état fondamental  $^1S_0 3d^{10}$  vers le niveau supérieur  $^1S_0 3d^9 4d$  de l'ion lasant Kr IX, il est nécessaire que les électrons aient une énergie cinétique supérieure à 145 eV (représentée en trait pointillé noir sur la Figure 2.5). Or, nous constatons qu'en polarisation linéaire les électrons ne possèdent pas assez

d'énergie pour permettre le pompage de la transition laser. Il est donc indispensable que la polarisation du laser de pompe soit circulaire, tout au plus légèrement elliptique, pour favoriser un fort pompage.

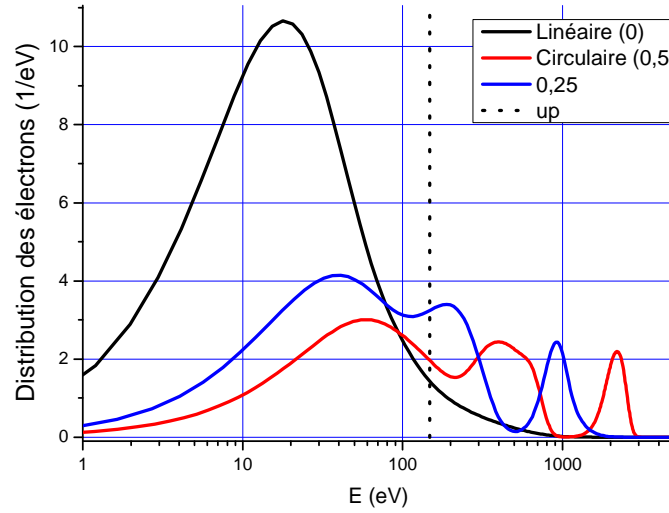


Figure 2.5 : Distribution énergétique des électrons pour différents états de polarisation du laser calculée pour un éclairement du laser infrarouge égal à  $10^{17} \text{ W/cm}^2$ .

## 2.1.4 Propagation et réfraction d'un laser intense dans un milieu gazeux

Nous allons commencer par introduire quelques notions indispensables pour l'étude d'un plasma obtenu par la focalisation d'un laser. Nous étudierons comment se propage un faisceau dans le vide puis dans un milieu gazeux. Nous finirons par l'étude de la réfraction qui joue un rôle important dans la propagation d'un laser dans un plasma.

### 2.1.4.1 Propagation du faisceau gaussien dans le vide

Considérons un faisceau monochromatique se propageant dans le vide. La fonction du champ électrique  $\vec{E}$  associé à cette onde est une solution de l'équation d'Helmholtz :

$$\nabla^2 \vec{E} + k^2 \vec{E} = 0 \quad (15)$$

avec  $k = \frac{\omega}{c} = \frac{2\pi}{\lambda}$ . Pour le cas des lasers, les rayons amplifiés sont concentrés autour de l'axe qui définit la cavité (Oz). L'onde est dite paraxiale et s'écrit sous cette forme :

$$\vec{E} = U(r, z) e^{ikz} \vec{u} \quad (16)$$

L'équation d'Helmholtz peut s'écrire alors, dans le repère cylindrique, de cette manière :

$$\left[ \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} + 2ik \frac{\partial}{\partial z} \right] U(r, z) = 0 \quad (17)$$

Une solution de cette équation est dite celle des ondes paraboloides et nous pouvons écrire le champ complexe du faisceau  $E(r, z)$  dans le mode gaussien fondamental sous cette forme :

$$E(r, z) = E_0 \frac{W_0}{W(z)} e^{-\frac{r^2}{W^2(z)}} e^{-i \tan^{-1}\left(\frac{z}{z_R}\right) + ikz} e^{i \frac{kr^2}{2R(z)}} \quad (18)$$

où la première partie de l'exponentielle exprime l'amplitude, la deuxième et la troisième représentent successivement la phase longitudinale et radiale.  $W(z)$  est la largeur transverse du faisceau.  $R(z)$  est le rayon de courbure du front d'onde. Ils sont définis ainsi :

$$R(z) = \frac{z^2 + z_R^2}{z} \quad (19)$$

$$W(z) = W_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2} \quad (20)$$

où  $W_0$  dit waist est le rayon du faisceau à  $z = 0$ , il définit la distance à l'axe pour laquelle l'amplitude du champ est divisée par  $e$  sur l'axe. En fait, la diffraction naturelle de l'onde conduit à une taille non nulle du faisceau au foyer (à  $z = 0$ ) contrairement à ce que prévoit l'optique géométrique (voir Figure 2.6).  $z_R$  est la longueur de Rayleigh qui est définie comme étant la distance de propagation au bout de laquelle  $I(z)$  diminue d'un facteur 2.  $z_R$  est la longueur caractéristique de variation suivant  $z$  du rayon et de l'intensité du faisceau sur l'axe, elle se calcule par la relation suivante (dans le cas d'un faisceau non diaphragmé) :

$$z_R = \frac{\pi W_0^2}{\lambda} \quad (21)$$

Expérimentalement, le faisceau de pompe est gaussien et collimaté. Il est focalisé avec une optique de focalisation de longueur focale  $f$  et de diamètre  $D$ . Le rayon de la tache focale est donné par :

$$W_0 = \frac{1,22 \lambda f}{D} \quad (22)$$

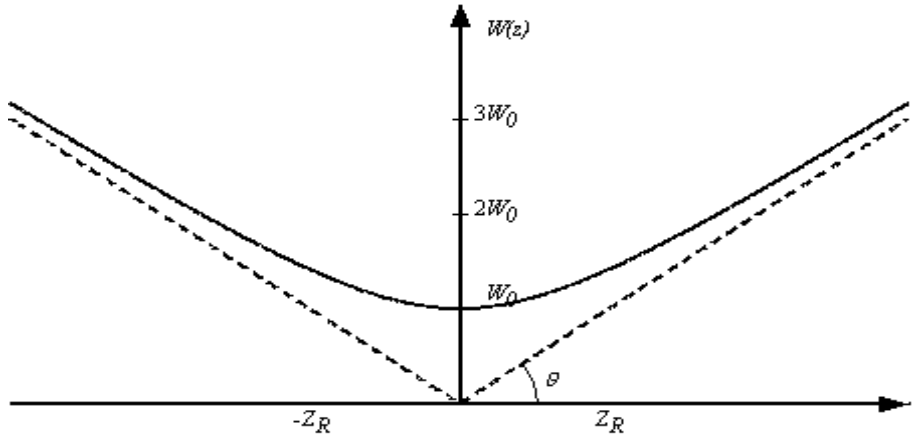


Figure 2.6 : Evolution du rayon d'un faisceau gaussien autour du foyer

#### 2.1.4.2 Propagation du faisceau gaussien dans le milieu gazeux

Afin de décrire la propagation du faisceau laser dans le milieu gazeux, il faut reprendre les équations de Maxwell dans le cas d'un milieu homogène (pas d'axe privilégié) en tenant compte du courant induit par le mouvement des électrons dans le plasma. Nous considérons que le milieu global est neutre et donc de densité  $\rho = 0$ .

L'équation de propagation (dite équation inhomogène d'Helmholtz) est alors :

$$\nabla E - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial J}{\partial t} \quad (23)$$

avec  $\frac{\partial J}{\partial t} = \frac{e^2}{m} n_e(r, z, t) E$  où  $n_e(r, z, t)$  est la densité électronique dépendant du temps et de

l'intensité du laser et  $\mu_0$  est la permittivité du vide.

En faisant le changement de variable suivant :  $\tau = t - z/c$ , et en posant  $E(r, z, t) = a(r, z, \tau) e^{i(kz - \omega t)}$ , nous obtenons dans le cas de l'approximation paraxiale et de l'approximation de l'enveloppe lentement variable :

$$2ik \left( \frac{\partial a}{\partial z} - \frac{2}{c} \frac{\partial^2 a}{\partial \tau \partial z} \right) + \nabla_{\perp}^2 a = k^2 \frac{n_e}{n_c} a \quad (24)$$

avec  $\nabla_{\perp}^2$  le laplacien transverse et  $n_c$  est la densité critique du plasma donnée par

$$n_c = \frac{\omega^2 m_e}{\mu_0 c^2 e^2} \text{ où } m_e \text{ et } e \text{ sont respectivement la masse et la charge d'un électron.}$$

La densité électronique dépend de l'intensité du champ et donc du temps et des coordonnées spatiales. Cette équation présente alors un terme non linéaire. Les variations spatiales et temporelles de la densité électronique sont à l'origine de plusieurs phénomènes physiques qui modifient la propagation du champ, ainsi que la forme temporelle de l'impulsion laser [61]. Nous nous intéresserons ici seulement à l'effet spatial sur la propagation.

### 2.1.4.3 Réfraction

Lorsque le laser interagit avec le gaz, du fait de la géométrie de pompage et de la présence d'un milieu fortement ionisé, le gradient de densité électronique produit une variation de l'indice de réfraction dans le plan transverse à l'axe de propagation.

L'indice de réfraction dans un plasma de densité électronique ( $n_e$ ) dépend de la pulsation propre du plasma ( $\omega_p$ ) et de celle de l'onde incidente ( $\omega$ ) qui l'a créé. Il est donné par :

$$n^2 = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \quad (25)$$

$$\text{avec } \omega_p^2 = \frac{n_e e^2}{\epsilon_0 m_e} \quad (26)$$

$$\text{et } \omega^2 = \frac{n_c e^2}{\epsilon_0 m_e} \quad (27)$$

$n_c$  est la densité critique à partir de laquelle le rayonnement ne peut plus se propager. A partir de ces trois équations, l'indice de réfraction s'écrit alors :

$$n^2 = 1 - \frac{n_e}{n_c} \quad (28)$$

Nous travaillons avec un milieu de densité électronique de l'ordre de  $n_e \approx 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ . A partir de l'équation (27), nous pouvons calculer la densité critique pour le laser de pompage et celle pour le laser X. Pour le pompage, nous allons utiliser un laser titane saphir ( $\lambda \approx 800\text{nm}$ ), nous avons donc  $n_c = 1,75 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ . Pour le laser X dans le xénon ( $\lambda = 41,8\text{nm}$ ), nous avons  $n_c = 6,4 \cdot 10^{23} \text{ cm}^{-3}$ . Dans les deux cas,  $n_e \ll n_c$  (la dispersion de vitesse de groupe que peut entraîner l'indice de réfraction par rapport au vide est par conséquent négligeable). Le développement limité au premier ordre de l'équation (28) donne :

$$n = 1 - \frac{1}{2} \frac{n_e}{n_c} \quad (29)$$

Cette équation n'est valable que dans le cas d'un plasma homogène. En réalité, nous devons prendre en compte l'inhomogénéité du plasma qui dépend principalement de la distribution spatiale de l'intensité. L'indice de réfraction  $n(r, \theta, z)$  dépend alors de la position  $\vec{r}(r, \theta, z)$  du rayon dans le plasma ( $z$  est l'axe de propagation). Nous prenons le cas simple d'un profil de densité électronique parabolique et nous supposons que sur la longueur de Rayleigh (zone qui nous intéresse), l'intensité (et donc la densité électronique) ne dépend pas de  $z$ . En prenant la symétrie cylindrique, l'équation (28) s'écrit alors :

$$n(r) = 1 - \frac{1}{2} \frac{n_e(r)}{n_c} \quad (30)$$

Plus généralement, la trajectoire d'un rayon se propageant dans un milieu inhomogène d'indice de réfraction  $n(x, y, z)$  peut se déterminer à partir de l'approximation classique :

$$\frac{d}{ds} \left( n \frac{d\vec{r}}{ds} \right) = \vec{\nabla} n(x, y, z) \quad (31)$$

où 
$$ds = \sqrt{(dx)^2 + (dy)^2 + (dz)^2} \quad (32)$$

En supposant que le profil de densité ne dépend que du paramètre transverse, cette équation s'écrit alors:

$$n(r) \frac{d^2 r}{dz^2} = \frac{dn(r)}{dr} \quad (33)$$

#### 2.1.4.4 Effet de la réfraction sur la propagation

En se propageant dans un milieu avec un profil d'indice de réfraction minimal sur l'axe, la vitesse de phase est plus petite sur les bords. Cela conduit à une courbure du front de phase et donc à une divergence du faisceau. Le plasma se comporte alors comme une lentille divergente qui déplace le foyer et augmente la taille  $w_0$  du faisceau comme le montre la Figure 2.7. Par conséquent, la longueur de Rayleigh est plus courte et l'intensité maximale dans le plan focal diminue. Deux types de réfraction se présentent alors. Le premier concerne le faisceau du laser X qui peut s'éloigner de la région où le gain est maximal. Le deuxième concerne le faisceau de pompage qui, pendant sa propagation, va créer, au niveau des pieds du front avant de l'impulsion, le gradient de densité qui va le défocaliser. Comme le montre l'équation (25), cet effet est moins critique pour les plus courtes longueurs d'onde. Il est plus important de deux ordres de grandeur pour le faisceau infrarouge.

Pour évaluer l'effet de la réfraction, Rankin *et al* [62] ont défini la condition décrite ci-après. La longueur du plasma au bout de laquelle la phase de l'impulsion sur l'axe change de  $\pi/2$  est :

$$L_D = \frac{\lambda}{2} \frac{n_c}{n_e} \quad (34)$$

Si cette distance est inférieure à la longueur de Rayleigh alors la réfraction doit être prise en considération. A partir de l'équation (21) nous pouvons écrire :

$$\frac{n_c}{n_e} > \frac{\lambda^2}{2\pi w_0^2} \quad (35)$$

Le waist  $w_0$  est de l'ordre de 30  $\mu\text{m}$ . Cette inégalité n'est vérifiée que pour le laser de pompe à 800 nm. La réfraction du laser X dans notre cas (un milieu dilué de quelques millimètres de longueur) jouera un rôle très limité. En revanche, la réfraction du laser de pompe aura de conséquences néfastes sur la formation du milieu amplificateur. Elle constitue en effet une limitation majeure pour le pompage longitudinal.



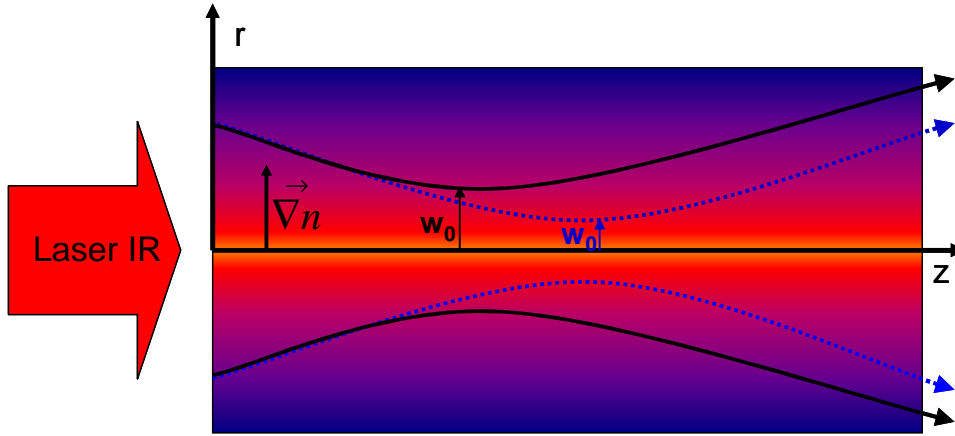


Figure 2.7 : Réfraction et propagation du laser infrarouge dans un plasma à fort gradient. Le faisceau est défocalisé (traits noirs) par rapport à sa position de focalisation dans le vide (Traits en pointillés bleus).

#### 2.1.4.5 Simulations numériques de la propagation du laser de pompe

Nous venons de voir que la propagation linéaire d'impulsions femtosecondes peut être décrite de façon analytique. L'introduction d'effets non-linéaires telle que la dispersion électronique due à l'ionisation, ne permet plus de résolution analytique. Par conséquent, nous avons eu recours à une résolution numérique de l'équation de propagation.

Nous avons utilisé pour cela un code de propagation nommé OFI-PROP et développé par G. Maynard du LPGP [63]. Dans ce code inspiré des travaux de S. C. Rae [64] et qui constitue une partie du code COFIXE, le calcul du transport du faisceau IR est utilisé pour déterminer une table d'intensité  $I_{\max}(r, z)$  qui sera utilisée par la suite par un code collisionnel-radiatif. Le transport du faisceau IR étant étroitement lié au processus d'ionisation par le champ laser, les atomes de krypton deviennent de plus en plus ionisés au fur et à mesure que le faisceau laser se propage dans le milieu gazeux. Comme la probabilité d'ionisation dépend de l'éclairement laser, le laser interagit avec un plasma inhomogène dans les deux directions (transverse et longitudinale). Dans la gamme de pression considérée ici, les pertes d'énergie dues à l'ionisation ont été négligées. De plus, l'éclairement du laser (dans le plasma) étant inférieur à  $10^{18} \text{ W.cm}^{-2}$ , les effets non linéaires relativistes ont aussi été négligés.

Dans le code OFI-PROP [65], le transport du laser IR dans le krypton est calculé dans l'approximation paraxiale, en géométrie cylindrique, en résolvant l'équation (24).

Le front montant de l'impulsion laser  $n(r, z, \tau)$  croît avec le temps du fait de l'ionisation séquentielle des atomes de krypton mais reste, dans la gamme de densité étudiée ici, toujours inférieur à  $n_c$ . L'ionisation est ici considérée dans l'approximation tunnel en utilisant les taux ADK moyennés pour calculer les probabilités d'ionisation [cf § 2.1.2].

Les paramètres d'entrée sont la densité atomique, le waist du faisceau, la polarisation, la position du point de focalisation, l'éclairement maximal et la durée de l'impulsion laser. De plus, il est possible de définir les profils temporel et spatial de l'impulsion laser.

La Figure 2.8 montre une série de carte d'ionisation calculée par OFI-PROP pour différentes densités de krypton comprises entre 5 et 50 mbar. L'éclairement maximal du laser infrarouge est ici de  $8.10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$ , la polarisation du laser est circulaire et le laser est focalisé 3,5 mm après la face d'entrée de la cellule. Nous observons très clairement que les effets de réfraction prennent de l'importance quand nous augmentons la densité atomique. Ceci occasionne un déplacement du foyer vers la face d'entrée de la cellule de gaz. En conséquence, la zone amplificatrice, ici en rouge, raccourcit quand nous augmentons la pression du gaz dans la cellule, laissant la place à une zone moins ionisée qui peut devenir absorbante pour le laser à 32,8 nm (37,8 eV). Cette zone plasma (ici en bleue) est essentiellement peuplée d'ions Kr neutre,  $\text{Kr}^{1+}$ ,  $\text{Kr}^{2+}$ ,  $\text{Kr}^{3+}$ . Compte tenu des potentiels d'ionisation de ces états de charge présentés dans le Tableau 2-1, ils sont absorbants à la longueur d'onde qui nous intéresse. Nous tiendrons compte de cette zone absorbante quand nous confronterons les résultats expérimentaux aux calculs dans le chapitre suivant.

Cependant, ce code ne permet pas de suivre l'évolution hydrodynamique du plasma en fonction du temps. Il nous renseigne seulement sur l'état du plasma juste après le passage du laser. Comme nous le verrons par la suite, les moments de forte amplification se produisent 3 ps après la création du plasma et nous pouvons considérer, que dans cette échelle de temps, l'état du plasma est stationnaire.

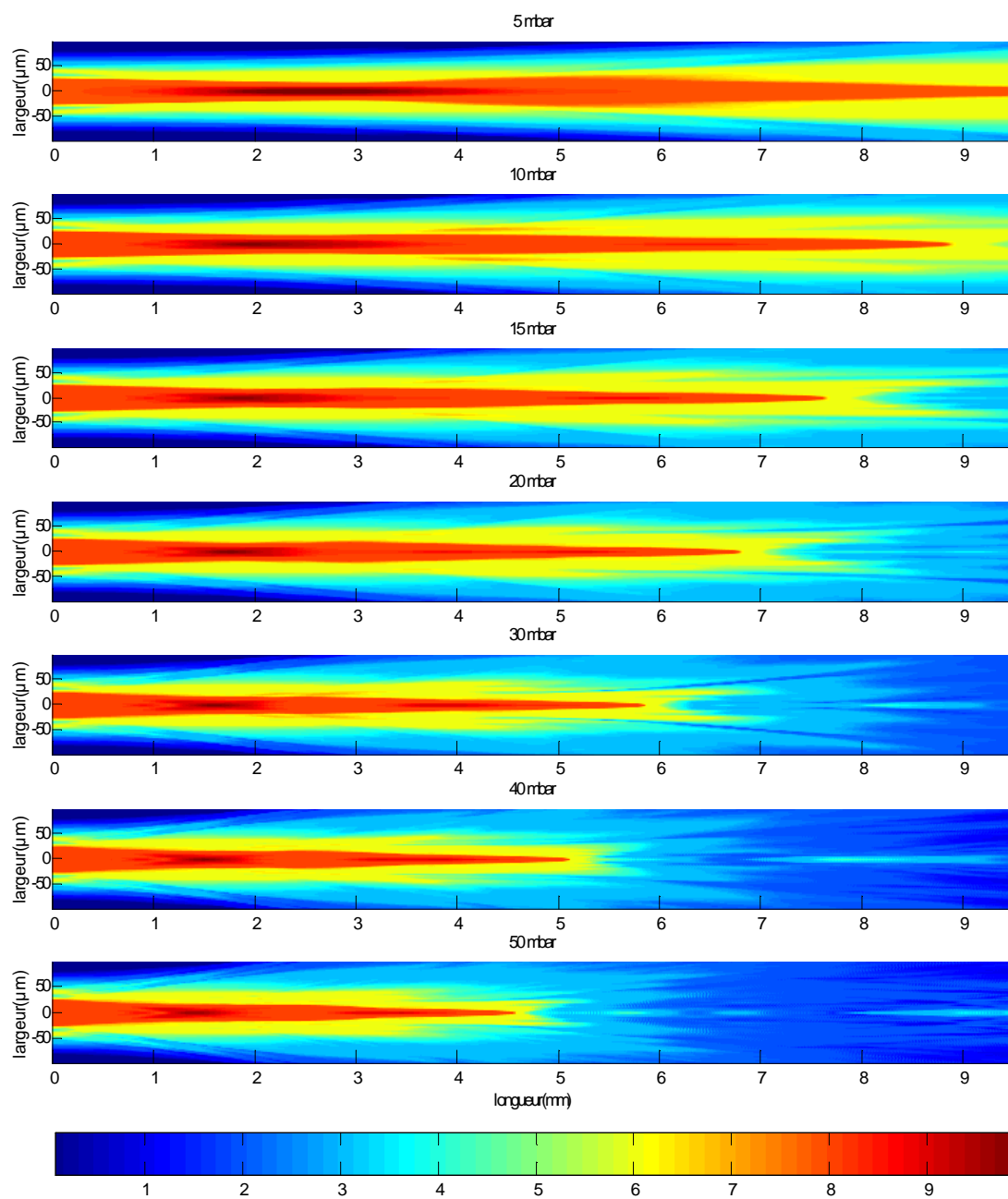


Figure 2.8 : Carte d'ionisation calculée par le code OFI-PROP pour différentes densités de krypton. L'échelle en couleur en bas correspond aux degrés d'ionisation.

## 2.2 La physique des harmoniques d'ordre élevé

L'étude de la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans des gaz rares est devenue, depuis une quinzaine d'années, un sujet majeur de l'interaction d'impulsions lasers intenses avec un atome. D'immenses progrès ont été réalisés aussi bien sur le plan théorique qu'expérimental. Ici, nous nous contenterons de présenter les bases de la physique impliquée dans la réalisation de cette source. Nous rappellerons aussi les propriétés spatiales et temporelles de la source qui seront utiles à la compréhension des expériences présentées dans ce manuscrit.

### 2.2.1 Le principe

Il y a deux aspects à considérer dans la génération d'harmoniques d'ordre élevé. Tout d'abord, d'un point de vue microscopique, la source de l'émission est due à la réponse fortement non linéaire d'un atome soumis à un champ laser intense. Egalement, d'un point de vue macroscopique, le champ harmonique mesuré aux cours des expériences est la superposition cohérente des champs émis par tous les atomes du milieu générateur. Ainsi la description théorique de la génération d'harmoniques est à la fois le calcul de la réponse de l'atome unique ainsi que l'accord de phase entre le champ harmonique et la polarisation induite par le champ laser et l'absorption du champ harmonique par le gaz lui-même.

#### 2.2.1.1 Réponse de l'atome unique

Le rayonnement harmonique provient de l'interaction fortement non linéaire entre un champ laser intense et les atomes d'un gaz ou d'un solide. Ce processus a été démontré pour la première fois en 1969 dans un milieu gazeux [66]. Il existe plusieurs façons de décrire le phénomène de génération d'harmoniques d'ordre élevé mais c'est le modèle dit « semi classique » qui est le plus souvent utilisé [67]. Cette description a été proposée par Corkum et al. en 1993 [68] et généralisée par Lewenstein et al. en 1994 [69] dans le cadre de la mécanique quantique.

Ce processus se décompose en trois étapes :

### Etape 1 : Ionisation par effet tunnel induite par le laser

L'abaissement de la barrière de potentiel au maximum du champ électrique du laser permet une probabilité d'ionisation par effet tunnel non nulle (voir Figure 2.9). L'électron issu de l'ionisation entre dans un état du continuum avec une vitesse nulle et se trouve près du noyau (modèle Strong Field Approximation). Ce phénomène peut se produire deux fois par cycle optique du fait de l'inversion du sens du champ du laser [59]. Ce qui explique que nous observons seulement les harmoniques séparées de  $2\omega$ .

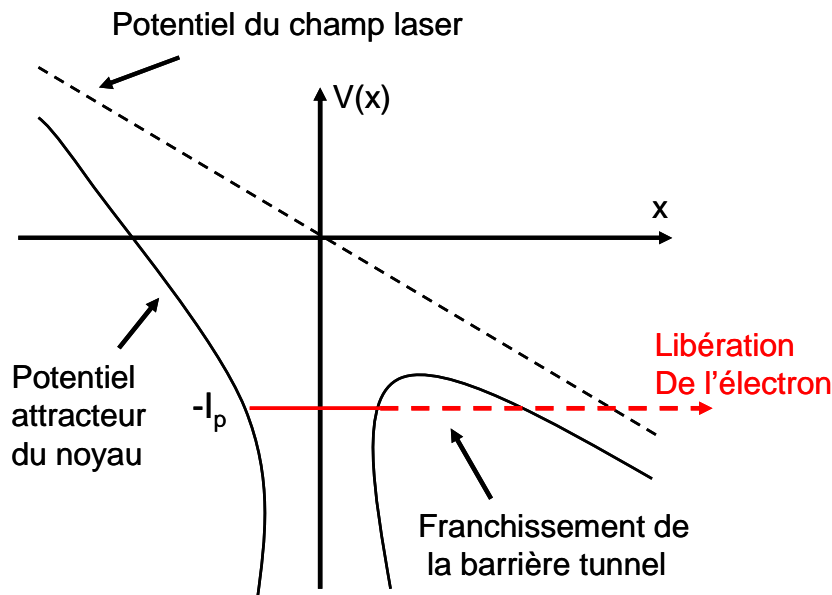


Figure 2.9 : Mécanisme d'ionisation par effet tunnel en présence d'un fort champ électrique laser oscillant.

### Etape 2 : Accélération dans le continuum par le champ du laser

L'électron libéré est accéléré par le champ laser et ne ressent pratiquement plus l'effet du potentiel attracteur du noyau (qui est alors négligé dans l'approximation de champ fort). Il acquiert une énergie cinétique dont la valeur dépend de son instant d'ionisation et de l'instant de sa recombinaison. Sa probabilité de recombinaison à l'ion parent s'exprime par la condition de retour de la trajectoire au voisinage de l'ion qui dépend de l'instant d'ionisation. En polarisation linéaire, l'électron est accéléré toujours dans la

même direction. Seul le sens de variation du champ électrique change, ce qui rend possible un retour au point initial.

### Etape 3 : Recombinaison radiative et émission d'un photon harmonique

Arrivé à proximité du noyau, l'électron a une probabilité non nulle de se recombiner à son ion parent en émettant un rayonnement harmonique. L'énergie de ce rayonnement est égale à la somme du potentiel d'ionisation de l'électron et de son énergie cinétique acquise pendant son passage dans le continuum.

Ce modèle en trois étapes permet de rendre compte des caractéristiques d'un spectre harmonique, c'est-à-dire l'existence d'un plateau suivi d'une coupure vers les ordres harmoniques élevés. En effet, la loi de coupure du plateau harmonique peut être expliquée par le fait que l'énergie maximale acquise par un électron est bornée. Ce maximum correspond à  $3,17.U_p$  où  $U_p$ , donné par la formule ci-dessous, est le potentiel pondéromoteur de l'électron dans le champ laser.

$$U_p(eV) = 5,945.10^{-14} I(W/cm^2) \quad (36)$$

L'énergie maximale des harmoniques est la somme de cette énergie maximale ajoutée à l'énergie de liaison de l'atome. Nous en déduisons l'ordre maximum de la coupure donné par l'équation suivante:

$$N_{\max} = (I_p + 3,17 U_p) / E_\omega \quad (37)$$

Où  $I_p$  est le potentiel d'ionisation et  $E_\omega$  est l'énergie du photon laser (à la pulsation  $\omega$ ).

L'énergie maximale des harmoniques dépend linéairement de l'intensité laser et dépend du gaz utilisé. Nous utilisons préférentiellement des gaz rares pour générer des harmoniques d'ordre élevé car ils ont les plus grands potentiels d'ionisation et sont simples d'utilisation. Pour notre expérience, nous souhaitons générer une harmonique à la longueur d'onde adaptée au milieu amplificateur, c'est à dire à 32,8 nm. Nous avons donc choisi l'argon qui possède une bonne efficacité de conversion dans cette gamme de longueur d'onde (de l'ordre de  $10^{-5}$  pour H25).

Le rayonnement harmonique, une fois émis par les atomes, se propage dans le milieu gazeux. Une bonne efficacité de génération est obtenue quand les champs émis par les dipôles sont en phase les uns avec les autres (accord de phase). Ils peuvent ainsi interférer

constructivement pour engendrer le champ total. De nombreux effets peuvent influencer le déphasage, comme la géométrie du faisceau laser et le taux d'ionisation.

### 2.2.1.2 Réponse macroscopique

L'efficacité de conversion des harmoniques d'ordre élevé dépend aussi fortement de la réponse macroscopique du milieu générateur. L'émission harmonique macroscopique est optimisée quand l'accord de phase est atteint, c'est à dire quand la différence de phase entre le champ généré et le champ générateur est minimisée au cours de la propagation le long du milieu générateur. Cet accord de phase s'écrit :

$$\vec{\delta k} = \vec{k}_q - q\vec{k} - \vec{K} \quad (38)$$

Où  $\vec{k}$  est le vecteur d'onde du laser fondamental,  $\vec{k}_q$  est le vecteur d'onde de l'harmonique q considérée et  $\vec{K}$  correspond au vecteur d'onde associé à la phase du dipôle atomique calculée lors de la réponse de l'atome unique.

La focalisation du laser introduit un déphasage géométrique (connu sous le nom de phase de Gouy) qui cause une modification du vecteur d'onde  $\vec{k}$  [70]. La relation de dispersion  $k = n \omega/c$  permet d'introduire l'indice du milieu qui dépend de la dispersion atomique, ainsi que la dispersion électronique.

Enfin, la réabsorption des harmoniques par le milieu générateur lui-même peut être un facteur limitant l'efficacité de génération des harmoniques [71].

## 2.2.2 Propriétés des harmoniques d'ordre élevé

### Efficacité de génération et gamme spectrale

Comme nous l'indique la loi de coupure, les photons les plus énergétiques sont produits dans les gaz rares légers. Cependant, l'efficacité de conversion dans les gaz rares plus lourds est plus importante. Le choix du gaz générateur dépend donc étroitement de la gamme spectrale d'intérêt. A titre illustratif la Figure 2.10 montre trois spectres harmoniques obtenus avec 3 gaz différents : le néon, l'argon et le xénon. Dans la gamme

spectrale qui va nous intéresser tout au long de ce manuscrit, nous nous sommes concentrés sur l'argon qui a une bonne efficacité de conversion autour de 30 nm.

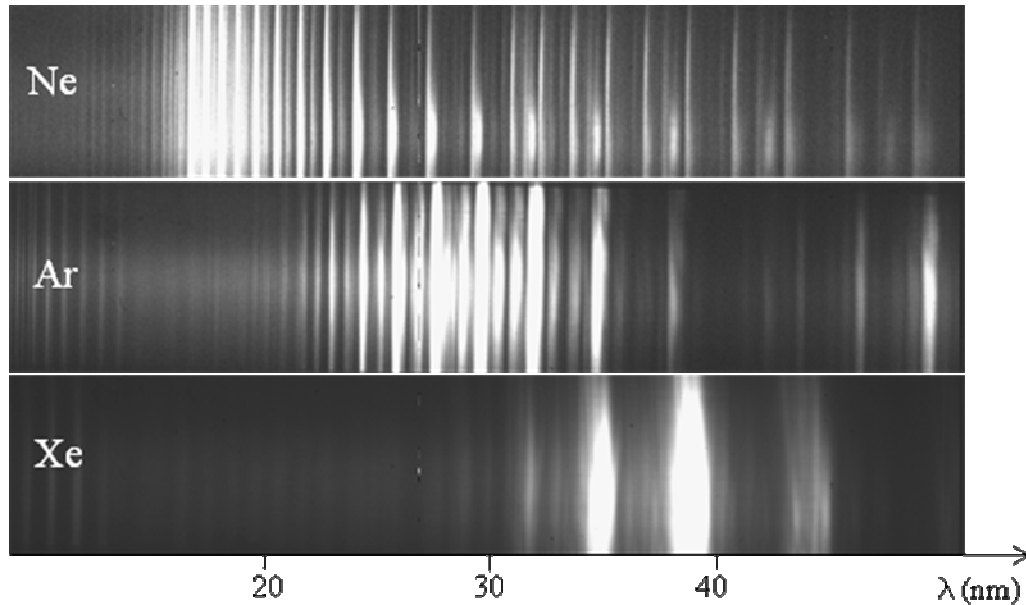


Figure 2.10 : Spectres d'harmoniques d'ordre élevé réalisés dans 3 gaz différents (figure tirée de la thèse de S. Kazamias).

**Le profil spatial** du faisceau harmonique est généralement circulaire avec une divergence de l'ordre du milliradian. Cependant il peut fortement dépendre de la manière dont l'accord de phase est obtenu dans le milieu générateur [72, 73]. Quand le laser est focalisé avant le milieu générateur, le profil spatial est plus étroit alors que, quand le faisceau laser générateur est focalisé après le milieu gazeux, le faisceau harmonique est moins collimaté et montre un creux d'intensité au centre du profil.

**Le front d'onde** des sources harmoniques a été relativement peu étudié. Toutefois les quelques analyses réalisées montrent que le front d'onde des sources harmoniques est généralement de bonne qualité [74]. Comme le montre la Figure 2.11, des variations moyennes de front d'onde de l'ordre de  $\lambda/7$  à 32 nm ont été mesurées avec un faisceau harmonique présentant un peu d'astigmatisme.



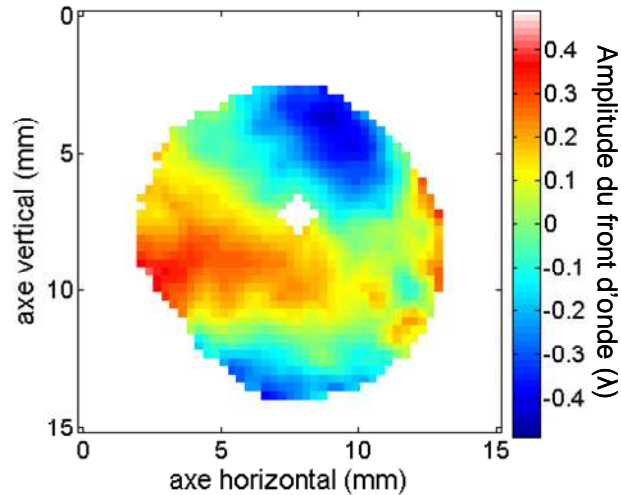


Figure 2.11 : Mesure de front d'onde d'une source harmonique d'ordre élevé.

**La cohérence spatiale** des harmoniques a été mesurée par de nombreux groupes à l'aide de différents diagnostics tels que les doubles fentes de Young ou des interféromètres [75, 76, 77]. Même si la cohérence spatiale du faisceau peut être altérée pour des hautes intensités laser, elle reste généralement excellente.

Grâce au modèle à trois étapes, nous montrons aussi que les harmoniques sont émises sous forme d'un **train d'impulsions attosecondes** ( $as = 10^{-18}$  s), dont l'écart entre deux impulsions est égal au demi cycle du laser fondamental (1,3 fs). La mesure de la structure temporelle des impulsions a été rendue possible grâce à la méthode RABBITT [78] ("Reconstruction of Attosecond harmonic Beating By Interference of Two-photon Transitions") utilisant un spectromètre à électrons. Une première expérience avec cette méthode a permis de mesurer des impulsions d'une durée de 250 as considérant 5 harmoniques du plateau bloquées en phase [79]. Lors de la reconstruction du train d'impulsions à la limite de Fourier, nous pouvons calculer la durée des impulsions en fonction du nombre  $N$  d'harmoniques bloquées en phase :  $T/(2N)$  où  $T$  est la période du laser infrarouge = 2,67 fs. Cependant, il a été démontré que les impulsions attosecondes présentent une dérive de fréquence quadratique qui élargit considérablement la durée des impulsions attosecondes [80, 81], dû au fait que les différentes harmoniques du plateau ne sont pas émises au même instant. Par contre, les harmoniques de la coupure étant toutes en phase ne subissent pas de dérive de fréquence.

L'intérêt de cette source est de pouvoir sonder la dynamique des électrons à une échelle temporelle proche du temps atomique [82] (durée correspondant à une rotation de l'électron de Bohr autour du noyau d'hydrogène). Pour les applications, il est préférable de disposer d'une seule impulsion attoseconde intense. Pour générer une impulsion unique, différentes équipes ont proposé plusieurs schémas [83] : utilisation d'un laser de très courte durée dont la phase de la porteuse est bloquée [84], utilisation d'une porte de polarisation avec des impulsions laser plus longues [85], l'utilisation de deux lasers à des fréquences différentes [86, 87], ou encore le combiné des deux méthodes [88]. Nous recherchons aussi à diminuer la durée de l'impulsion attoseconde en s'affranchissant de la dérive de fréquence intrinsèque par : le filtrage des harmoniques de la coupure [89], l'utilisation d'un filtre métallique qui compense la dérive intrinsèque pour les harmoniques du plateau [90], ou encore l'utilisation d'un miroir à dérive de fréquence à des longueurs d'onde XUV [91, 92].

**La cohérence temporelle** des harmoniques d'ordre élevé a été mesurée en 1998 [93]. En mesurant simultanément la durée de l'émission et son spectre, les mesures ont montré que  $\Delta\nu\Delta\tau \approx 2$ , résultat proche de la limite de Fourier, ce qui prouve que la cohérence temporelle des harmoniques est relativement bonne.

## 2.3 L'amplificateur à 32,8 nm dans le krypton nickeloïde

Comme nous l'avons indiqué dès le chapitre 1, la spécificité du laser étudié au cours de cette thèse est qu'il fonctionne non pas en mode ASE, comme c'est le cas pour la plupart des lasers XUV par plasma-laser, mais en mode injecté. Comme nous le verrons par la suite, ceci influe fortement sur le transfert radiatif et sur les propriétés optiques du rayonnement. Toutefois, afin de mieux comprendre les spécificités du régime injecté il est nécessaire de décrire le fonctionnement de l'amplificateur OFI en régime ASE. Le régime injecté sera plus amplement décrit dans les chapitres suivants quand nous présenterons les résultats expérimentaux.

### 2.3.1 Pompage collisionnel dans le krypton nickeloïde

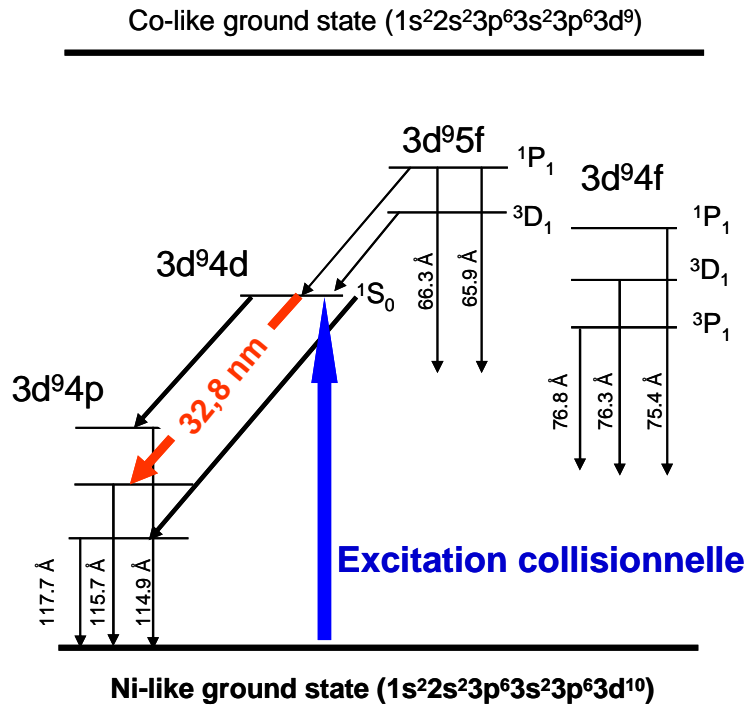


Figure 2.12 : Schéma de représentation de l'inversion de population du Krypton nickeloïde.

Un schéma simplifié des niveaux atomiques du krypton nickeloïde est présenté sur la Figure 2.12. Les excitations collisionnelles vers les différents niveaux s'effectuent à partir du niveau fondamental  $^1S_0 3d^{10}$ . Le niveau  $4d$  est un état métastable et le niveau  $4p$  se dépeuple plus rapidement par désexcitation radiative. Une inversion de population peut être obtenue entre les niveaux  $^1S_0 3d^9 4d$  et  $^1P_1 3d^9 4p$ . L'excitation collisionnelle de l'état fondamental  $^1S_0 3d^{10}$  vers le niveau supérieur  $^1S_0 3d^9 4d$  nécessite des électrons ayant une énergie cinétique supérieure ou égale à 145 eV.

Dans ce schéma de pompage, deux conditions doivent être réalisées simultanément : il faut créer un plasma ayant le bon état d'ionisation et générer des électrons suffisamment énergétiques pour pomper le niveau supérieur de la transition laser. Pour répondre à ces deux conditions, il faut que le laser infrarouge délivre un éclairement supérieur à  $5 \cdot 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$  et soit en polarisation circulaire ou elliptique.

### 2.3.2 Emissivité et coefficient de gain

Un rayonnement provenant d'une transition atomique peut être caractérisé par deux grandeurs spectrales : l'émissivité  $j(\nu)$  et le gain  $g(\nu)$ .

**L'émissivité** est la densité spectrale d'énergie rayonnée produite par unité de volume et par unité de fréquence :

$$j(\nu) = N_2 h \nu A(\nu) \quad (W \text{ cm}^{-3} \text{ Hz}^{-1}) \quad (39)$$

avec  $h$  la constante de Planck,  $\nu$  la fréquence de l'émission,  $N_2$  la population du niveau supérieur de la transition atomique et  $A(\nu)$  le coefficient d'Einstein qui exprime la probabilité de l'émission spontanée par intervalle de fréquence. Ce coefficient peut s'écrire comme le produit de la probabilité totale  $A$  de l'émission spontanée de la transition entre les deux niveaux et de la fonction normalisée  $\Phi(\nu)$  donnant le profil de raie, comme suit :

$$A(\nu) = \Phi(\nu) A \quad (40)$$

avec  $\Phi(\nu)$  vérifiant :

$$\int_0^{+\infty} \Phi(\nu) d\nu = 1 \quad (41)$$

**Le gain**  $g(\nu)$  renseigne sur les qualités amplificatrices du milieu et est défini par :

$$g(\nu) = \left( N_2 - \frac{g_2}{g_1} N_1 \right) \frac{c^2}{8\pi \nu^2} A \Phi(\nu) \quad (cm^{-1} \text{ Hz}^{-1}) \quad (42)$$

où  $g_2$  et  $g_1$  sont respectivement les dégénérescences des niveaux supérieur et inférieur.

Pour nous permettre de calculer l'émissivité et le coefficient de gain de notre amplificateur plasma à 32,8 nm nous utiliserons sur un code collisionnel-radiatif qui permet de calculer la dépendance temporelle des paramètres qui contribuent à l'amplification XUV. Le plasma généré par OFI évolue essentiellement à cause des collisions électron-ion et électron-électron. Sur une petite échelle de temps, les collisions électron-ion peuplent les états excités de l'ion lasant et notamment les niveaux inférieurs et supérieurs de la transition laser. L'ionisation des ions  $Kr^{8+}$  par collision électron-ion met fin à l'amplification en faisant disparaître l'ion lasant. Dans un premier temps, le code calcule la distribution énergétique des électrons selon un modèle proposé par Pert [94]. La

distribution des électrons est calculée en un point sur l'axe du faisceau laser en fonction du temps à partir du passage du laser ( $t = 0$ ). Pour les données atomiques, nous avons considéré 128 niveaux de  $\text{Kr}^{8+}$ . Les taux de collisions [95] ainsi que les données atomiques du krypton ont été calculés par un code appelé « superstructure » [96]. Ainsi, le code utilise ces données pour calculer le coefficient de gain et l'émissivité. Il permet aussi de calculer l'intensité de saturation et la largeur de raie dont nous parlerons par la suite. Les paramètres d'entrée de ce code sont la densité atomique du Krypton et les paramètres du laser infrarouge sont : l'éclairement, la durée d'impulsion, la longueur d'onde et la polarisation du laser de pompe.

A titre illustratif, la Figure 2.13 montre l'évolution du coefficient de gain calculé dans un cas typique après le passage du laser infrarouge ( $t = 0$ ). Cet exemple a été calculé à une pression de 20 mbar et avec des paramètres du laser infrarouge proches des valeurs expérimentales tels que :  $I_{\text{max}} = 10^{17} \text{ W/cm}^{-2}$ , durée = 30 fs et polarisation circulaire. Nous observons, sur cet exemple, que le gain augmente rapidement, atteint son maximum ( $150 \text{ cm}^{-1}$ ) autour de 3 picosecondes après la création du plasma, puis diminue lentement : les collisions des électrons-ions conduisent à une surionisation du plasma et détruisent le milieu amplificateur.

Les mesures que nous présenterons dans les chapitres suivant seront intégrées temporellement. En conséquence, les gains mesurés seront plus proches des valeurs du coefficient de gain moyennées dans le temps. En régime ASE, nous pourrions considérer alors le gain dit effectif qui est de l'ordre de  $G_{\text{eff}} \approx 40 \text{ cm}^{-1}$  dans le cas de la Figure 2.13.

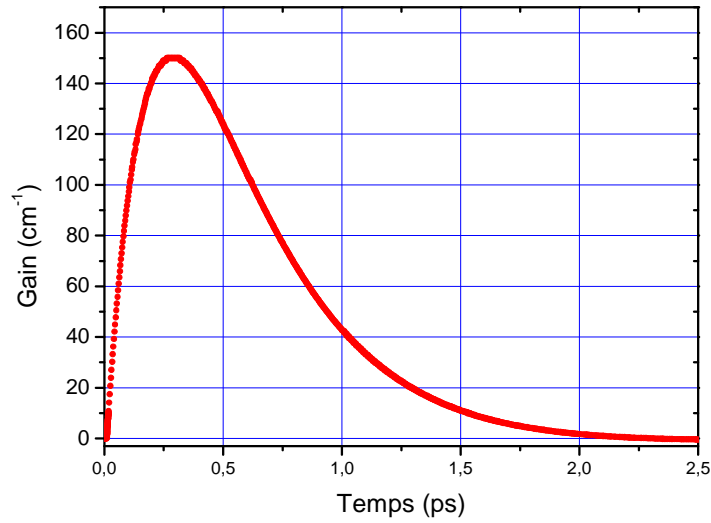


Figure 2.13 : Evolution du facteur du gain après le passage du laser infrarouge. Ce calcul a été réalisé pour une pression de krypton de 20 mbar et avec des paramètres du laser infrarouge proches des valeurs expérimentales:  $I_{\max} = 10^{17} \text{ W/cm}^2$ , durée= 30 fs et polarisation circulaire.

### 2.3.3 Transfert radiatif

Nous cherchons maintenant à décrire l'amplification de l'émission laser XUV au cours de sa propagation le long d'une colonne de plasma. Pour cela nous calculons l'intensité du rayonnement le long de cette colonne. Nous considérons un milieu amplificateur homogène de forme cylindrique de longueur  $L$  et de rayon  $a$  avec la condition  $a < L$  (Figure 2.14). Le rayonnement est émis selon un angle solide  $\Omega = \frac{\pi a^2}{L^2}$ ; nous négligeons pour le moment l'effet de réfraction du rayonnement X.

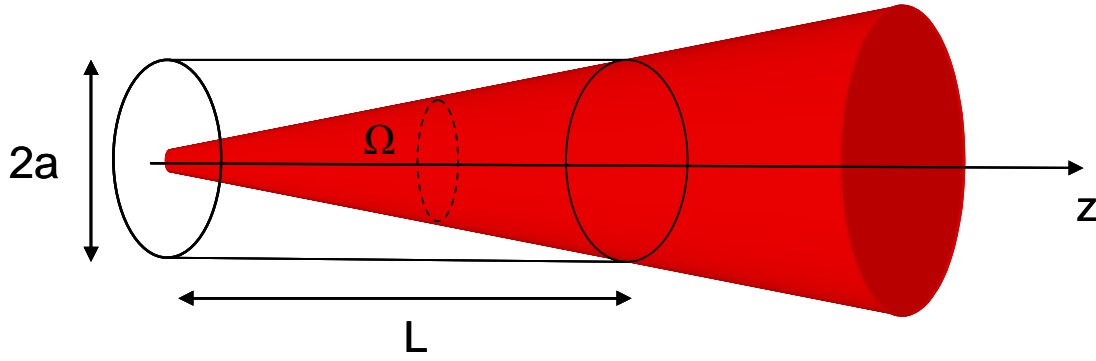


Figure 2.14 : Géométrie simplifiée pour définir l'intensité produite par un milieu actif.

L'intensité de rayonnement émis à la fréquence  $\nu$  est dépendant des processus d'absorption et d'émission stimulée et suit l'équation de transfert radiatif. Elle s'écrit sous la forme :

$$\frac{dI(z, \nu)}{dz} = j(\nu) + g(\nu)I(z, \nu) \quad (43)$$

En intégrant l'équation précédente, nous obtenons l'intensité spectrale  $I(z, \nu)$  émise à la fréquence  $\nu$  à la sortie du milieu amplificateur en petit signal (sans saturation), soit :

$$I(L, \nu) = \frac{j(\nu)}{g(\nu)} \left( e^{g(\nu)L} - 1 \right) \quad (44)$$

Cette expression montre que l'intensité croît de façon exponentielle avec la longueur du plasma dans le cas d'un gain positif, c'est-à-dire avec une inversion de population entre les niveaux 1 et 2. Nous avons vu que les coefficients du gain  $g(\nu)$  et d'émissivité  $j(\nu)$  décrivent les processus d'absorption et d'émission du plasma mais dépendent également du profil de raie  $\Phi(\nu)$ . Cependant, nous pouvons approximer  $\nu$  par la fréquence centrale  $\nu_0$  dans les expressions de l'émissivité (39) et du gain (42). En effet, les largeurs spectrales des transitions sont inférieures de plusieurs ordres de grandeur à la fréquence de rayonnement émis. Nous considérons donc l'égalité suivante :

$$\frac{j(\nu)}{g(\nu)} = \frac{j_0}{g_0} \quad (45)$$

où  $j_0$  et  $g_0$  sont respectivement l'émissivité et le gain au centre de la raie. L'intensité émise (45) devient :

$$I(L, \nu) = \frac{j_0}{g_0} \left( e^{g_0 L} - 1 \right) \quad (46)$$

Lindford *et al.* [97] ont donné une expression analytique de l'intensité totale dans le cas de profil de raie quelconque. Dans le cas d'une raie gaussienne, celle-ci peut s'écrire :

$$I(L) = \frac{\sqrt{\pi} j_0 \left[ e^{g_0 L} - 1 \right]^{3/2}}{2 \sqrt{\ln 2} g_0 L e^{g_0 L}} \quad (47)$$

Cette formule est une très bonne approximation pour des produits gain ( $g_0 L$ ) longueur supérieurs à 3 comme c'est le cas dans les lasers XUV pompés par excitation collisionnelle. La croissance exponentielle de l'intensité permet d'obtenir un laser XUV intense sur des longueurs assez courtes (sur une dizaine de millimètres). Le terme  $g_0 L$  montre un rétrécissement du profil par le gain. Cependant, contrairement à ce qu'exprime la formule de Lindford, l'intensité ne croît pas indéfiniment en fonction de la longueur du milieu amplificateur. En effet, à partir d'une certaine intensité, l'émission stimulée diminue l'inversion de population et donc le gain laser. Nous rentrons alors dans un régime de saturation.

### 2.3.4 Régime de saturation

Le régime de saturation se produit lorsqu'il y a une diminution de l'inversion de population et, par conséquent, une chute du coefficient de gain. En effet, à partir d'une longueur du milieu amplificateur assez grande, le dépeuplement du niveau supérieur par l'émission stimulée et le peuplement du niveau de la transition lasante sont en équilibre, ce qui entraîne une diminution du gain (voir Figure 2.15). Introduisons l'intensité correspondant à ce régime que nous appellerons intensité de saturation. Elle est définie comme l'intensité pour laquelle le gain (ou l'inversion de population) est diminué de moitié. Le gain s'écrit alors :

$$G(\nu) = \frac{G_0(\nu)}{1 + \frac{\bar{I}}{I_s}} \quad (48)$$

où  $\bar{I}$  est l'intensité moyennée sur le profil spectral  $\phi(\nu)$  :  $\bar{I} = \int_0^{+\infty} \phi(\nu) I(\nu) d\nu$  et  $I_s$  est l'intensité de saturation qui s'écrit sous la forme :

$$I_s = \frac{h \nu}{\sigma \tau_r} \quad (49)$$



où  $\tau_r$  est le temps de recouvrement du gain, et  $\sigma$  la section efficace définie par :

$$\sigma = \frac{\lambda^2 A}{8\pi \Delta\nu} \quad (50)$$

avec  $A$  le coefficient d'Einstein et  $\Delta\nu$  la largeur à mi-hauteur du profil de raie.

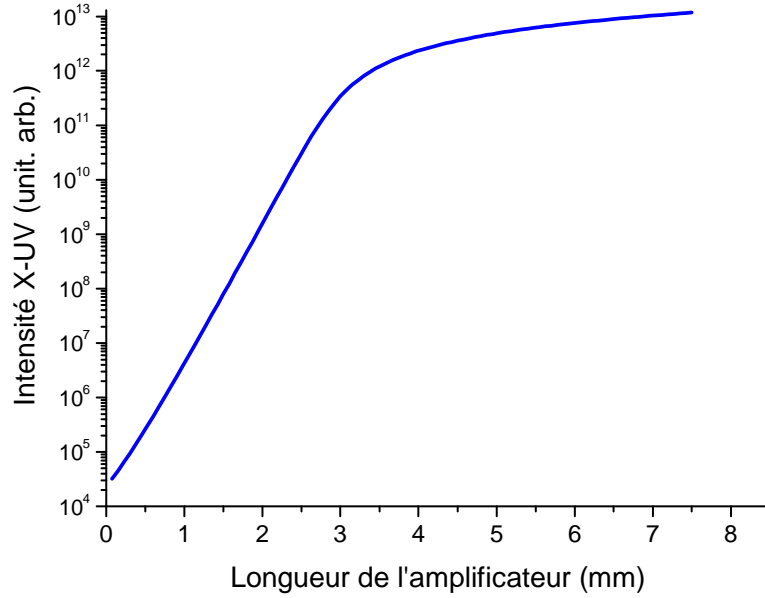


Figure 2.15 : Intensité intégrée spectralement d'un laser XUV en fonction de la longueur de l'amplificateur. Le gain max est ici de  $80 \text{ cm}^{-1}$ , valeur correspondant à une mesure du gain de la transition 4d-4p [48]. La saturation intervient ici pour une longueur légèrement inférieure à 2 mm.

La résolution de l'équation de transfert radiatif nous permet de définir un produit gain-longueur dans le cas où l'intensité de saturation serait égale à l'intensité émise :

$$(g.L)_{sat} = \ln \left( \frac{4\pi \Delta N}{\Omega N_2 A \tau_r} \right) \quad (51)$$

où  $\Omega$  est l'angle solide et  $\Delta N = N_2 - N_1$ .

Nous pouvons voir dans cette équation que la valeur de  $(g.L)_{sat}$  dépend de la géométrie du milieu et des caractéristiques atomiques du milieu. De plus, le régime de saturation est caractérisé par une croissance linéaire de l'intensité.

### 2.3.5 Largeur spectrale

La largeur spectrale du rayonnement émis est déterminée par deux sources d'élargissement spectral :

- L'élargissement homogène
- L'élargissement inhomogène

**L'élargissement homogène** affecte tous les émetteurs de la même manière. Il est déterminé par la durée de vie des différents niveaux intervenant dans la transition. Cette durée de vie est limitée par la désexcitation spontanée de l'émetteur et aussi par les collisions des électrons. Le profil spectral homogène prend une forme de type Lorentzien :

$$\phi(\nu, \nu_0) = \frac{2}{\pi \Delta \nu_L} \frac{1}{1 + \frac{4(\nu - \nu_0)^2}{(\Delta \nu_L)^2}} \quad (52)$$

où  $\nu_0$  est la fréquence centrale et  $\Delta \nu_L$  la largeur spectrale exprimée en unité de fréquence.

L'élargissement homogène a été calculé à l'aide du code COFIXE qui prend en compte la nature non maxwellienne de la distribution d'énergie des électrons. Nous obtenons dans le cas du krypton  $\Delta \lambda_L = 5 \text{ m}\text{\AA}$ .

De manière générale, **l'élargissement inhomogène** est causé par le fait que tous les émetteurs ne rayonnent pas à la même fréquence centrale  $\nu_0$ . Il existe deux types d'élargissements inhomogènes, l'élargissement Doppler et l'élargissement Stark.

**L'élargissement Doppler** est lié à l'agitation thermique des ions émetteurs et conduit à un profil spectral gaussien :

$$S(\nu, \nu_0) = \frac{1}{\Delta \nu_D} \left( \frac{4 \ln 2}{\pi} \right)^{1/2} \exp \left( - \frac{4 \ln 2 (\nu - \nu_0)^2}{(\Delta \nu_D)^2} \right) \quad (53)$$

où  $\nu_0$  est la fréquence centrale et  $\Delta \nu_D$  la largeur spectrale définie par :

$$\Delta \nu_D = \frac{2 k_b \nu_0}{c M_p} \sqrt{2 \ln 2} \sqrt{\frac{T_i (eV)}{A(g)}} \quad (54)$$

avec  $M_p$  la masse du proton et  $A$  le nombre de masse,  $k_b$  la constante de Boltzman et  $c$  la vitesse de la lumière.

Dans le cas des plasmas OFI, l'élargissement Doppler est introduit par les ions rapidement chauffés (quelques centaines de fs) qui résultent de l'ionisation par le champ du laser. Des travaux théoriques ont en effet montré que le plasma OFI est produit dans un état où d'importantes corrélations entre les ions existent [98]. Le plasma se détend rapidement avec un temps égal à la période du plasma (sur quelques centaines de fs). Pour les conditions de l'amplificateur OFI, la température atteinte par les ions après cette relaxation est égale à  $T_i = 6$  eV. Nous prenons en compte cet effet en supposant un élargissement non homogène conduisant à un profil spectral gaussien  $S(\nu, \nu_0)$  et il a été calculé, toujours dans le cas du krypton, un  $\Delta \nu_D = 7 m\text{\AA}$ .

**L'élargissement Stark** est dû au champ électrique extérieur à l'ion créé par son environnement qui en modifie les niveaux d'énergies. Comme cet environnement dépend de chaque ion, l'effet statistique conduit à un élargissement global. C'est un effet qui croît avec la densité. Les ions et les électrons créent un champ électrique  $F$  au point où se trouve chaque ion rayonnant. Des simulations réalisées avec le code Pim-Pam-Poum [99] nous ont montré que l'effet Stark ionique peut être négligé (voir Figure 2.16). Cet effet ne devient significatif qu'à très haute densité.

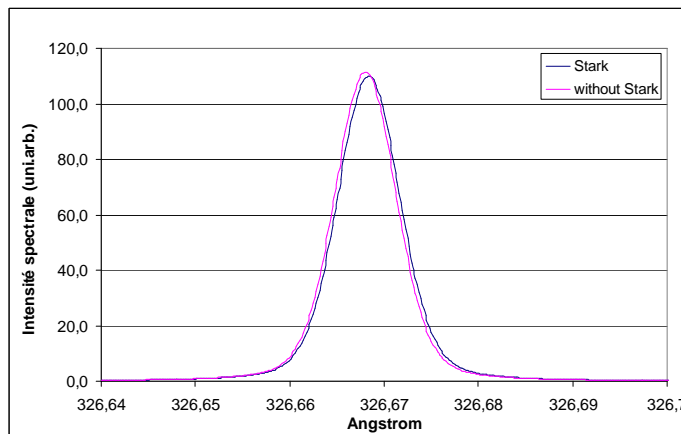


Figure 2.16 : Largeur spectrale calculée avec le code Pim-pam-poum avec et sans effet Stark pour une pression de 30 mbar de krypton. La composante homogène est sous-estimée car la distribution non maxwellienne des électrons n'est pas prise en compte dans le code.

L'élargissement inhomogène est donc principalement dominé par l'effet Doppler. Les deux types d'élargissements coexistent pour le calcul de la largeur spectrale de l'harmonique amplifiée. L'évolution du profil spectral en fonction de la longueur d'amplification a été calculée suivant Koch *et al.* [100] en résolvant l'équation différentielle ci-dessous :

$$\frac{dI(\nu, z)}{dz} = \left( \frac{j(\nu_0)}{\Phi(\nu_0)} + \frac{G_0 I(\nu, z)}{\phi(\nu_0)} \right) \times \int_0^\infty \frac{S(u) \phi(\nu, u)}{1 + \frac{1}{I_{sat}} \int I(\nu', z) \phi(\nu', u) d\nu'} du \quad (55)$$

$j(\nu_0)$  est la densité de puissance de l'émission spontanée,  $I_{sat}$  est l'intensité saturation,  $G_0$  le gain petit signal, et  $\Phi$  le profil de Voigt résultant de la convolution du produit des profils homogène et inhomogène  $\phi$  et  $S$ .

L'évolution de la largeur de la raie 4d-4p (à mi-hauteur) en fonction de la longueur d'amplification est représentée sur la Figure 2.17 pour un fonctionnement en régime ASE. Dans le domaine où l'amplification est exponentielle, la largeur de raie avant amplification est divisée par un facteur de l'ordre de  $\sqrt{g.L}$  où  $g.L$  le produit gain-longueur effectif. Cette évolution prend fin lorsque la saturation de l'amplification devient importante. Comme le montre la Figure 2.17, dans le régime de saturation, la largeur de la raie amplifiée peut augmenter avec la longueur du plasma si la température ionique, qui détermine l'élargissement Doppler de la transition, est élevée. Le calcul a été réalisé pour trois températures ioniques (6, 24 et 54 eV) avec un gain de  $80 \text{ cm}^{-1}$  (valeur expérimentale [48]), une largeur homogène égale à  $\Delta\lambda_H = 5 \text{ mÅ}$  (calculée par le code de physique atomique) et sur une longueur de 7,5 mm. Nous observons que le rélargissement de la raie par la saturation est très important pour une température ionique de 54 eV ( $\Delta\lambda_D = 21 \text{ mÅ}$ ) alors qu'aucun rélargissement par la saturation n'est observé pour une température de 6 eV, ceci en raison de l'importante contribution de l'élargissement homogène.

Avec les valeurs de la contribution homogène et inhomogène calculées précédemment avec le code de physique, la résolution de l'équation (55) donne une largeur spectrale à mi-hauteur de  $2,8 \text{ mÅ}$  (courbe en noire) en régime ASE.

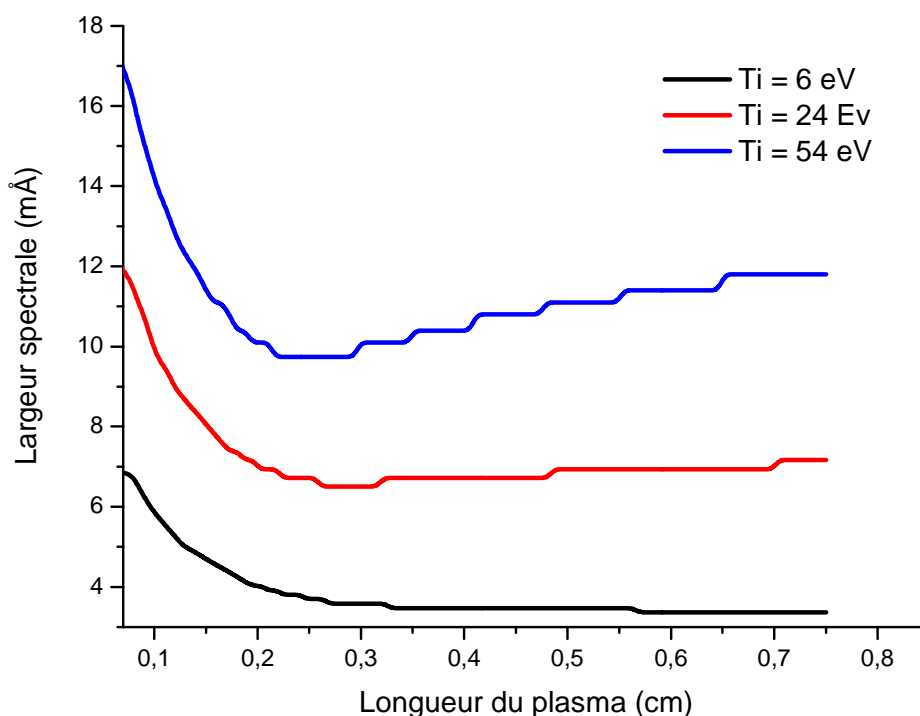


Figure 2.17 : Evolution de la largeur à mi-hauteur de la raie à 32,8 nm, calculée en fonction de la longueur d'amplification. :  $g_0 = 80 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\Delta\lambda_H = 5 \text{ mÅ}$ . Trois températures ioniques différentes, correspondant à trois élargissements Doppler différents, sont considérées.

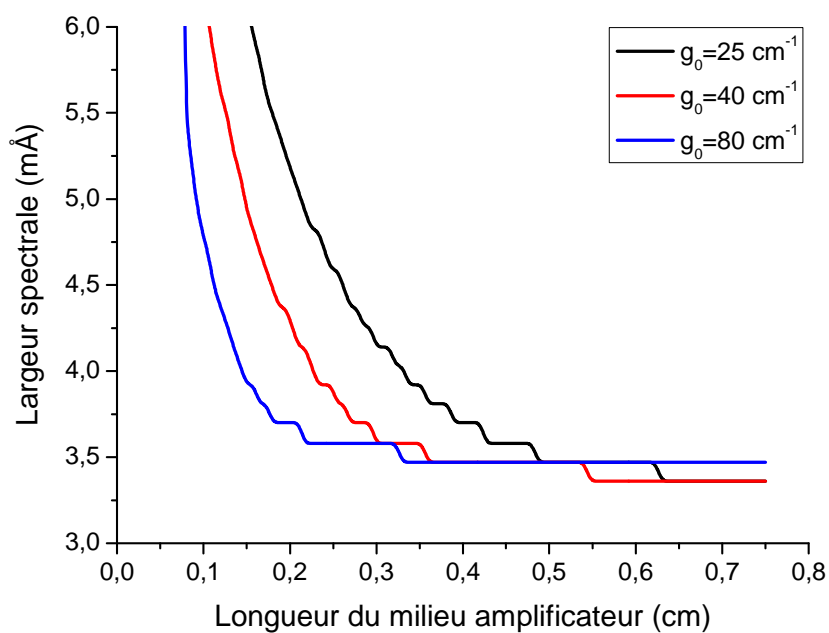
### Cas spécifique du laser en mode injecté

La prise en compte de l'évolution de la largeur spectrale au cours de l'amplification prend une grande importance pour l'amplification d'harmonique par un plasma de laser XUV. En effet, comme nos mesures le confirmeront dans le chapitre 4, la largeur spectrale du gain est bien plus étroite que la largeur spectrale du faisceau harmonique d'injection. Ainsi, le calcul du rayonnement amplifié doit non seulement dépendre du coefficient de gain et de l'intensité de saturation mais aussi du niveau d'intensité de l'harmonique injectée et surtout de sa largeur spectrale.

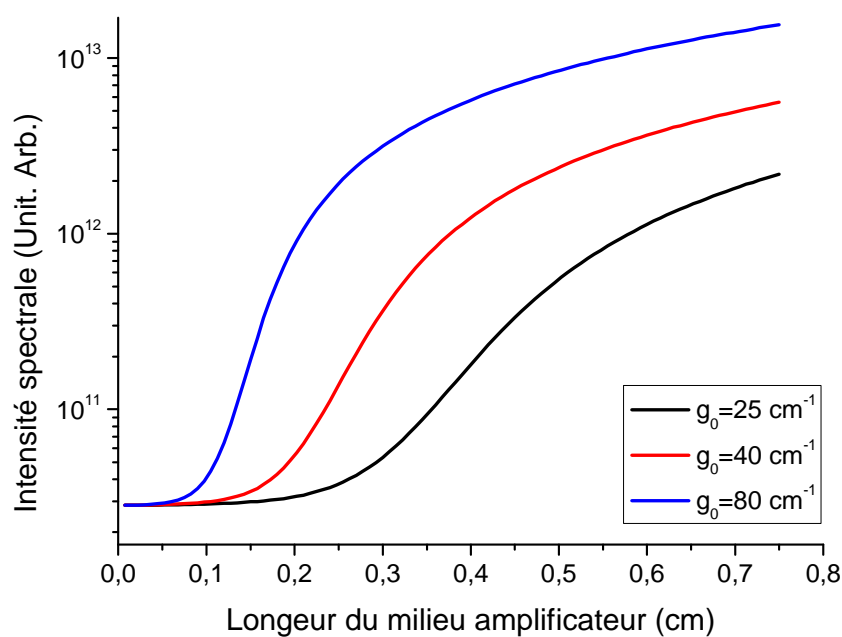
Afin de quantifier l'influence de ces différents paramètres sur l'amplification des harmoniques par notre amplificateur plasma, nous avons adapté le modèle de l'équation (55). Pour cela, l'émission spontanée a été négligée et l'énergie de l'harmonique injectée a

été calculée par rapport à l'intensité de saturation de telle sorte à obtenir une amplification proche de celle mesurée expérimentalement. Pour le calcul nous avons pris une valeur de la largeur spectrale de l'harmonique autour de 0,1 nm.

L'évolution de la largeur spectrale (à mi-hauteur) de la transition 4d-4p en fonction de la longueur d'amplification est représentée sur la Figure 2.18(a). Le calcul a été réalisé pour trois valeurs de gain : 80, 40 et 25 cm<sup>-1</sup>. Dans les trois cas, le calcul montre que la largeur spectrale diminue rapidement avec la longueur de l'amplificateur jusqu'à ce que le régime de saturation soit atteint. Comme nous pouvions nous y attendre, plus la valeur du gain est élevée plus vite le régime de saturation sera atteint. Ensuite, la largeur spectrale diminue très lentement avec la longueur. Notons qu'aucun rélargissement par la saturation n'est observé en raison de l'importante contribution de l'élargissement homogène. La Figure 2.18 (b), nous montre l'évolution de l'intensité de l'harmonique amplifiée en fonction de la longueur du plasma. Contrairement à la courbe de gain de l'émission ASE (Figure 2.15), l'amplification de l'harmonique ne devient significative qu'à partir d'une certaine longueur de plasma (de 1 à 2 mm pour les coefficients de gain considérés ici). Cette longueur de plasma sur laquelle il n'y a pas d'amplification sera d'autant plus importante que le gain petit signal sera grand. Ce retard à l'amplification est dû au fait que le faisceau injecté a une largeur spectrale beaucoup plus grande que celle du gain. Une infime fraction de cette énergie initiale est donc amplifiée. Pour que sa contribution à l'énergie totale soit significative, il faut une amplification importante. Nous reviendrons sur ce point dans les prochains chapitres.



(a)



(b)

Figure 2.18 : (a) Evolution de la largeur à mi-hauteur de la raie à 32,8 nm, calculée pour trois valeurs de gain (25, 40, 80  $\text{cm}^{-1}$ ) en fonction de la longueur d'amplification. (b) Intensité intégrée spectralement d'un laser XUV en fonction de la longueur de l'amplificateur pour les mêmes valeurs de gain.

---



---

# **Chapitre 3 : Caractérisation d'un amplificateur XUV OFI par amplification d'harmonique**

Dans ce chapitre nous nous concentrerons essentiellement sur l'étude de l'amplificateur plasma de  $\text{Kr}^{8+}$  et de ses propriétés. Dans ce but nous utiliserons l'amplification du faisceau harmonique pour tenter de comprendre l'influence de la densité du plasma, de la longueur d'amplification, de la polarisation du laser de pompe sur le processus d'amplification et donc aussi sur les caractéristiques de la source à 32,8 nm.

Dans un premier temps nous décrirons le montage expérimental que nous avons utilisé pour nos expériences. Nous débuterons par présenter les caractéristiques du laser de pompe infra rouge utilisé avant de décrire le dispositif expérimental proprement dit pour la génération d'harmoniques d'ordre élevé et pour le milieu amplificateur. J'insisterai sur les différentes précautions prises pour réaliser les mesures avant de présenter une étude expérimentale du laser injecté à 32,8 nm en fonction de différents paramètres, tels que la densité de l'amplificateur, la polarisation du laser générant le plasma amplificateur et la longueur de ce plasma.

## **3.1 Dispositif expérimental**

### **3.1.1 La chaîne laser infrarouge**

Les expériences ont été réalisées dans la salle jaune du LOA qui accueille le laser le plus puissant du Laboratoire. Ce laser est une chaîne de technologie saphir dopé au titane pouvant délivrer en routine des impulsions de 35 fs de durée, d'énergie de l'ordre du Joule,

à une cadence de 10 Hz dans le domaine de l'infrarouge (IR) centrées autour de 810 nm. L'amplification de ce laser IR est obtenue par une méthode appelée « par dérive de fréquence ». Cette méthode dite CPA (Chirped Pulse Amplification) [101] consiste à étirer temporellement les impulsions dans un milieu dispersif (prisme ou réseau) puis à amplifier ces impulsions étirées sans craindre les phénomènes non linéaires dûs aux fortes intensités et enfin à les comprimer temporellement pour retrouver la durée initiale.

Nous allons maintenant décrire dans le détail le fonctionnement de cette chaîne laser [102] qui est schématiquement représentée sur la Figure 3.1. La source du système est un oscillateur Ti :Sa à blocage de mode qui émet à une cadence de 88 MHz un train d'impulsions de 2 nJ de 15 fs de durée dont le spectre est centré à 810 nm et d'une largeur à mi-hauteur de l'ordre de 50 nm. Les impulsions sont étirées temporellement jusqu'à 400 ps par un étireur de type Offner. Un modulateur acousto-optique (Dazzler) permet de modifier la structure spectrale des impulsions et ainsi de compenser le rétrécissement du spectre par le gain et d'optimiser la phase spectrale pour une meilleure compression des impulsions [103]. Le laser est ensuite injecté dans trois étages amplificateurs successifs. Le premier amplificateur est un amplificateur « 8 passages » qui permet d'atteindre une énergie de 2 mJ à une cadence de 10 Hz. A la sortie d'un deuxième amplificateur « 5 passages », l'énergie atteinte est de l'ordre de 200 mJ. Le faisceau est filtré spatialement et injecté dans le dernier amplificateur. Celui-ci est pompé par 6 lasers de pompe de 1,2 J chacun. A chaque changement d'amplificateur le faisceau est « agrandi ». Il est refroidi par un cryostat qui permet de maintenir sa température à -150° afin de minimiser les effets de lentille thermique qui sont toujours délicats à compenser [104].

Le faisceau est finalement séparé en deux à l'aide d'une séparatrice (90-10 %). Les 10 % du faisceau, que nous appellerons faisceau secondaire ou faisceau « sonde », serviront pour la génération d'harmoniques d'ordre élevé et les 90 % du faisceau serviront à la création du plasma amplificateur et est appelé faisceau principal ou faisceau « pompe ».

Les deux faisceaux sont finalement comprimés à l'aide de compresseurs indépendants placés sous vide pour éviter des effets non linéaires qui peuvent se produire dans l'air. Après compression, la durée des impulsions est de l'ordre de 35 fs. L'énergie du faisceau principal est de l'ordre de 1,3 J alors que celle du faisceau secondaire est de l'ordre de 100 mJ. Les dimensions sont de 60 mm et 35 mm de diamètre pour respectivement le faisceau pompe et le faisceau sonde.

Pour corriger le front d'onde du faisceau principal et ainsi assurer une focalisation optimale, un miroir déformable a été implémenté en sortie de compresseur.

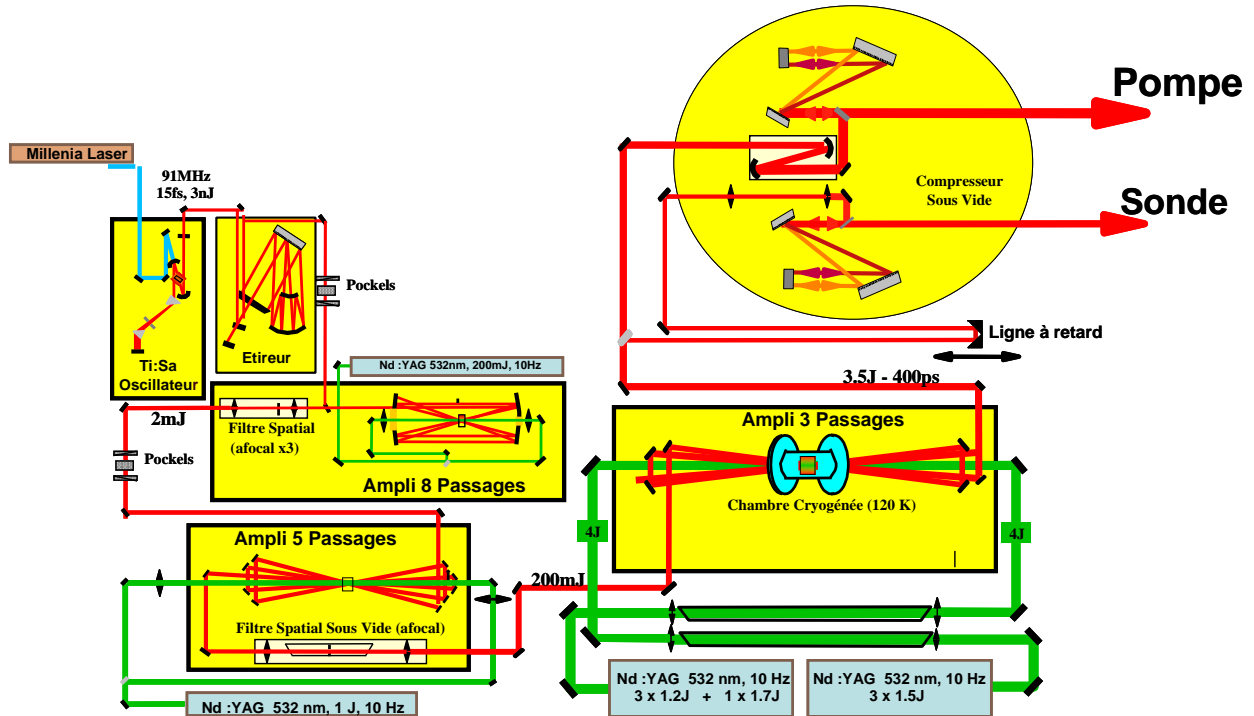


Figure 3.1 : Schéma de la chaîne laser de la salle jaune du LOA.

### 3.1.2 Chaîne laser XUV

#### 3.1.2.1 Description du dispositif expérimental

Le dispositif de génération du laser XUV injecté utilisé au LOA est présenté dans la Figure 3.2. Il se compose de deux parties distinctes permettant respectivement de produire le faisceau harmonique (l'injecteur) et de l'amplifier dans un plasma (l'amplificateur).

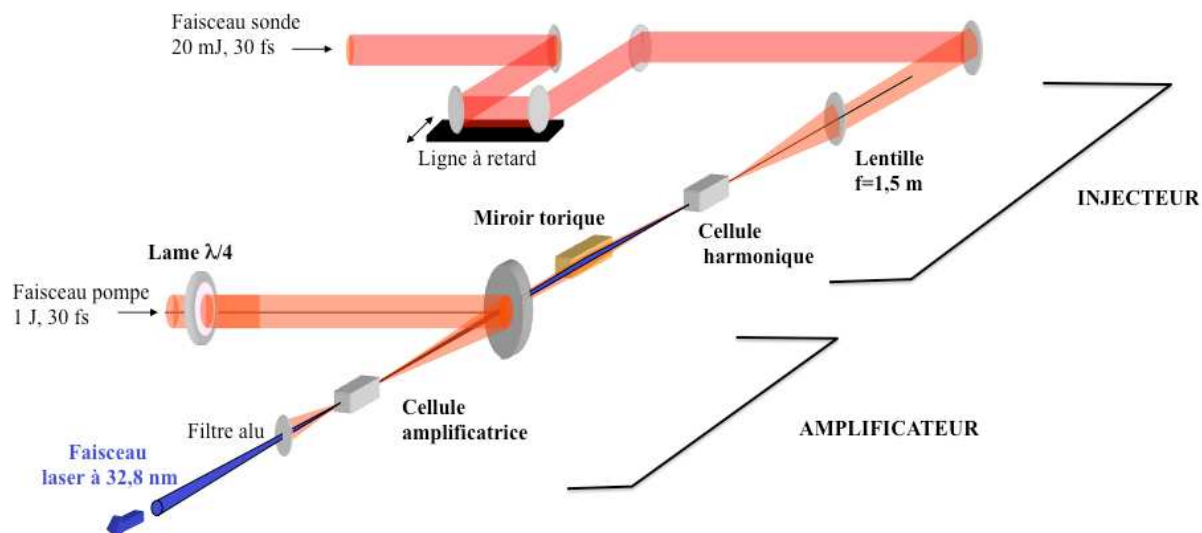


Figure 3.2 : Schéma de principe de la chaîne du laser XUV injecté. Sur la partie injecteur, nous utilisons une ligne à retard pour synchroniser les faisceaux ; le miroir torique image le faisceau harmonique à l'entrée du plasma amplificateur. Sur la partie amplificatrice, une lame quart d'onde change la polarisation linéaire du laser infrarouge en une polarisation circulaire. La focalisation dans la cellule de gaz est faite par un miroir sphérique. Derrière la cellule, un filtre en aluminium coupe le laser infrarouge mais laisse passer le rayonnement XUV.

La source harmonique d'injection est générée avec le faisceau « sonde ». Après avoir été comprimé, ce dernier repasse à l'air à travers un hublot. Le faisceau passe par une ligne à retard motorisée qui permet de synchroniser l'arrivée du faisceau d'injection dans l'amplificateur XUV avec le « moment du meilleur gain ». Le faisceau est focalisé par une lentille de 1,5 mètre de focale. L'optimisation du signal harmonique se fait au moyen d'un diaphragme à iris permettant d'ajuster l'énergie et de modifier la géométrie du foyer. Le foyer du laser se situe quelques millimètres avant la cellule de gaz placée dans une enceinte à vide. La tache focale varie de 100 à 200  $\mu\text{m}$  de diamètre selon le diamètre de l'iris. La cellule de gaz est alimentée en continu et la pression du gaz est régulée électroniquement.



Figure 3.3 : Photographie de la chaîne laser XUV injecté.

Pour focaliser le faisceau harmonique dans la cellule de gaz de l'amplificateur nous utilisons un miroir torique recouvert de platine comme le montre la Figure 3.2. Toutes les longueurs d'onde harmoniques émises par la cellule de gaz sont ainsi collectées et focalisées à l'entrée du plasma amplificateur. Ce miroir est utilisé en incidence rasante, avec un angle d'incidence de 84 degrés, pour laquelle il présente une réflectivité autour de 80 % à 32 nm. Il est conçu pour fonctionner en géométrie 1–1,5 m, c'est à dire qu'il est disposé à 1 m de la source harmonique et qu'il forme une image de la source harmonique à une distance de 1,5 m. Le grandissement est donc dans ce cas  $G = 1,5$ . Cette géométrie assure un recouvrement maximal de la zone de gain dont les dimensions transverses sont inférieures à 100  $\mu\text{m}$ .

***Le plasma amplificateur*** est, quant à lui, créé en focalisant le faisceau pompe dans une cellule remplie de Krypton dont la longueur peut varier entre 0 et 20 mm. La Figure 3.4 est une photographie prise du dessus de l'enceinte où est créé le plasma amplificateur. Une représentation du faisceau infra rouge nous permet de mieux apprécier le chemin optique qu'il parcourt dans l'enceinte. Le faisceau est conduit vers l'optique de focalisation (un miroir sphérique de 1 m de focale) à l'aide d'une série de miroirs plans. Le dernier miroir est percé en son centre afin de laisser passer le laser focalisé. Afin d'adapter la polarisation du laser aux meilleures conditions de pompage, une lame quart d'onde dont les axes peuvent être modifiés sous vide a été disposée sur le trajet du faisceau. Ce miroir de focalisation est percé au centre pour le passage du faisceau harmonique. Le réglage de ce miroir motorisé permet d'optimiser la position du foyer du laser à l'entrée de la cellule de krypton.



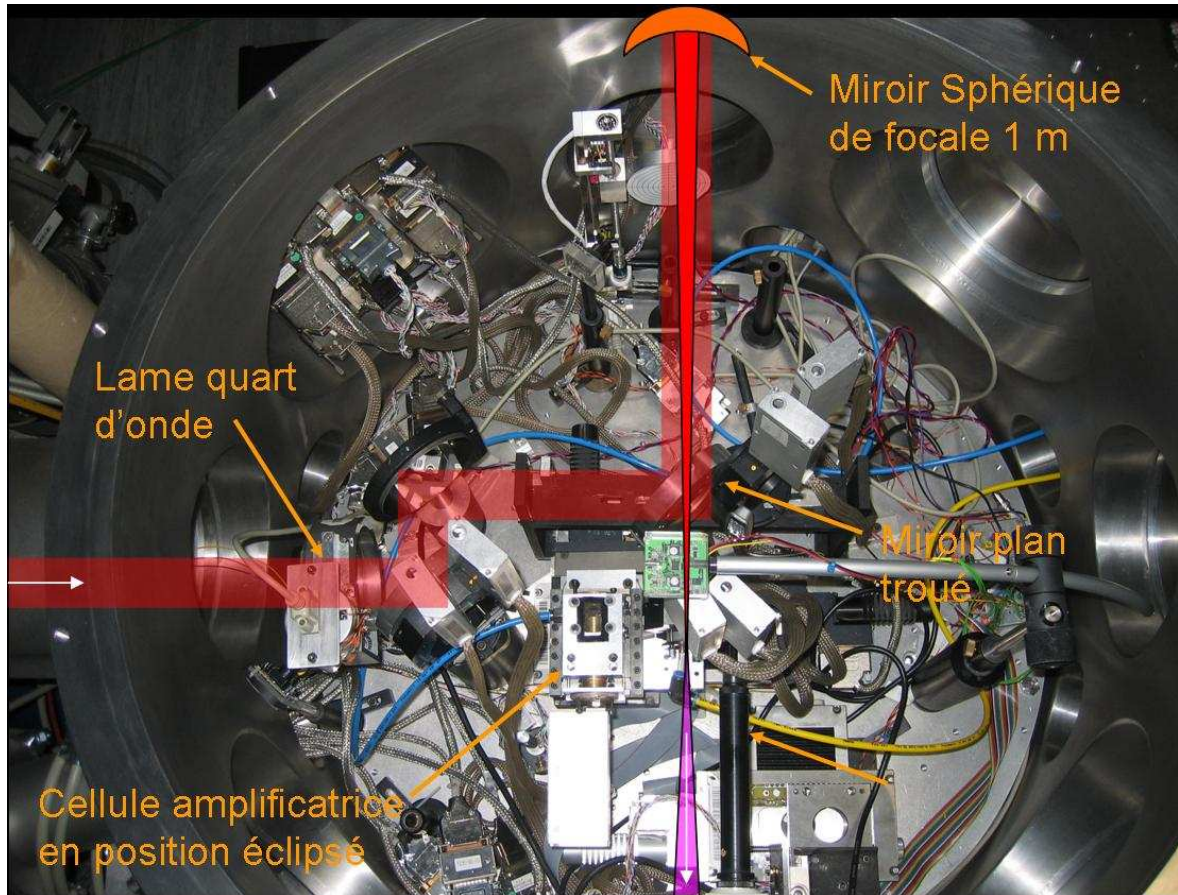


Figure 3.4 : Photographie de l'enceinte où est créé l'amplificateur OFI.

La tache focale a un diamètre de l'ordre de  $38 \mu\text{m}$  ( $\sim 1/e^2$ ), ce qui est proche de la limite de diffraction que nous estimons à  $33 \mu\text{m}$  avec une longueur de Rayleigh de  $1,4 \text{ mm}$ . Un exemple de tache focale après correction du miroir déformable est présenté sur la Figure 3.5. Nous remarquons la présence d'un anneau autour de la tache centrale caractéristique d'une structure de diffraction. Nous avons estimé qu'un tiers de l'énergie totale se trouve dans l'anneau et dans le pied de l'impulsion. Compte tenu des pertes d'énergie après les nombreuses réflexions sur les optiques et compte tenu de la fraction importante d'énergie en dehors de la tache centrale, nous pouvons estimer que l'intensité maximale au foyer est de l'ordre de  $8.10^{17} \text{ W/cm}^2$ .



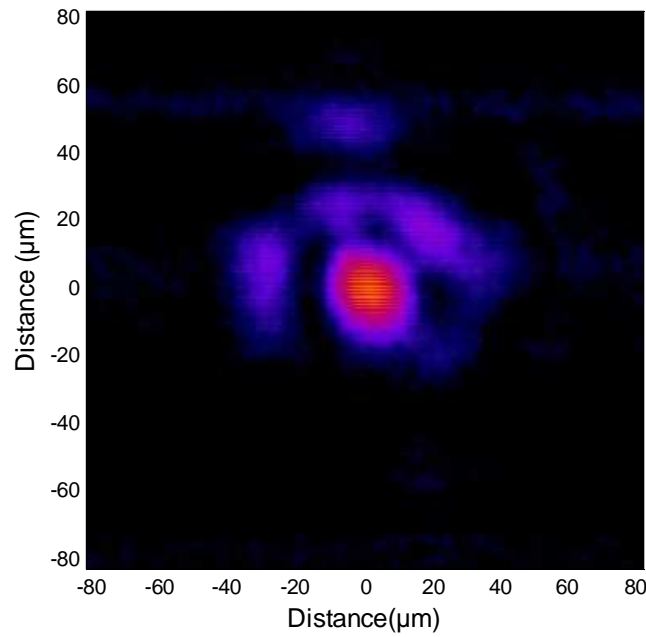


Figure 3.5 : Image de la tache focale du faisceau infrarouge réalisé avec une caméra équipée d'un objectif de microscope x10.

La cellule de gaz dans laquelle est produit le plasma amplificateur est fixée sur un système de platines de translation motorisées qui permet d'en contrôler la position dans les trois directions. L'entrée et la sortie sont fermées par de minces feuilles métalliques. Une fois le laser aligné sur son axe, la cellule de gaz est percée de part en part par le laser. Elle est continuellement alimentée en krypton pour qu'il y règne une pression constante et homogène. Toutefois, le gaz s'échappe inexorablement vers le vide de l'enceinte par les trous de la cellule ce qui peut induire une extension du plasma hors de la cellule.

### 3.1.2.2 Ajustement du couplage injecteur-amplificateur

Afin d'assurer l'amplification du faisceau harmonique à 32,8 nm il est nécessaire que les couplages spatial, temporel et spectral soient parfaitement et simultanément ajustés.

La première étape, et souvent la plus contraignante, est le **couplage spectral** à 32,8 nm. Celle-ci consiste à accorder la longueur d'onde d'une harmonique (ici l'harmonique 25) à celle de la longueur d'onde de transition 4d-4p à 32,8 nm. Ce réglage est réalisé en

ajustant la phase spectrale du laser générateur. En effet, sachant que les harmoniques sont essentiellement générées sur le front montant de l'impulsion laser, le contrôle de la dérive de fréquence permet de faire varier finement les longueurs d'onde harmoniques émises. Ainsi, en modifiant le tirage du compresseur du laser de pompe des harmoniques (distance entre les réseaux), le changement de la dérive de fréquence modifie la fréquence instantanée au moment de l'émission sur le front avant de l'impulsion ce qui décale le spectre harmonique.

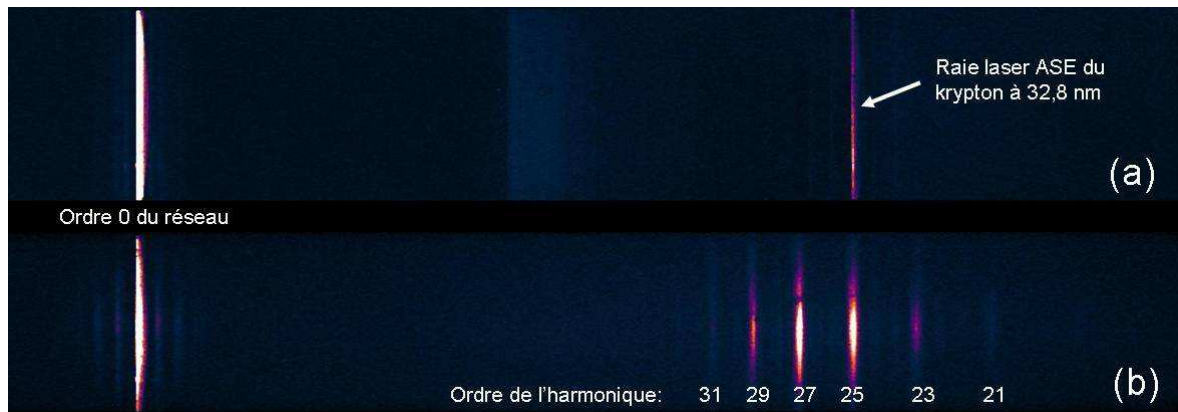


Figure 3.6 : Exemples de spectres obtenus pour le faisceau harmonique (b) et l'émission ASE (a) avec le spectromètre à réseau.

L'accordabilité des harmoniques en fonction de la distance entre les réseaux de compression du laser de pompe est illustrée sur la Figure 3.7. Toutefois dans le cas montré ici, nous voyons très bien que la longueur d'onde harmonique n'atteint jamais parfaitement la longueur d'onde souhaitée à 32,8 nm.

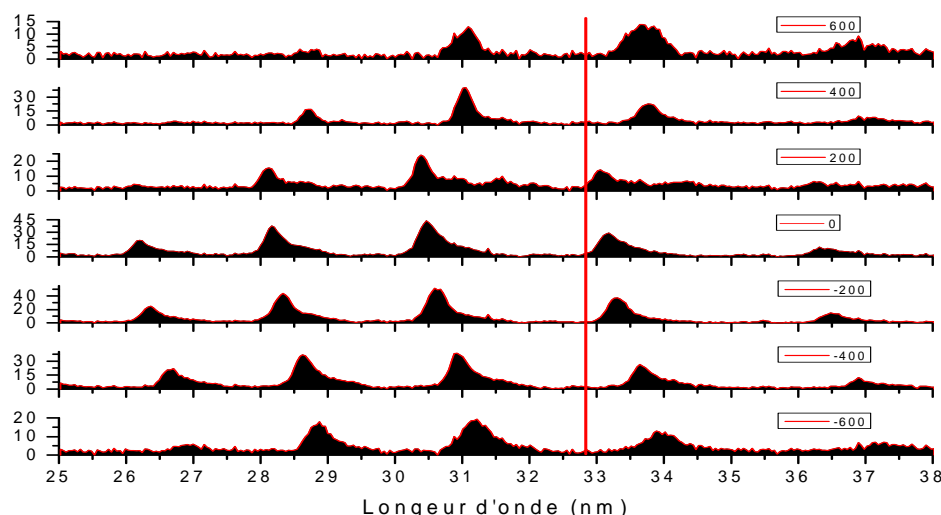


Figure 3.7 : Spectres du faisceau harmonique obtenus en fonction de la distance entre les réseaux du compresseur. La ligne montre la position de la raie d'émission du laser ASE.

L'amplificateur à krypton nickeloïde est pompé longitudinalement pour que la zone de gain soit alignée sur l'axe du laser de pompe. Le faisceau harmonique étant colinéaire au faisceau pompe du plasma, le **couplage spatial** est réalisé en superposant les faisceaux infrarouges « pompe » et « sonde » au niveau de la cellule de krypton. Dans ce but nous avons utilisé une caméra munie d'un objectif de microscope (x10) pour superposer avec précision les deux faisceaux au niveau de la cellule de l'amplificateur. Cependant la superposition spatiale ne sera pas parfaite du fait que la dimension de la tache focale du faisceau de pompe des harmoniques (entre 225 et 400  $\mu\text{m}$  de diamètre) est plus grande que celle du faisceau de pompe de l'amplificateur (40  $\mu\text{m}$  de diamètre).

Un dernier paramètre à ajuster est la **synchronisation des deux impulsions**. La superposition temporelle se fait à l'aide de la même imagerie utilisée pour la superposition spatiale. Tout d'abord nous ajustons l'énergie des deux faisceaux IR préalablement superposés pour qu'ils aient des intensités comparables puis nous ajustons la position de la ligne à retard du faisceau sonde. Le moteur utilisé possède une précision de un micron qui nous permet d'avoir une précision d'ajustement temporel de 6,5 fs. Quand les deux faisceaux sont synchronisés, nous observons l'apparition d'une figure d'interférence comme le montre la Figure 3.8. En mode injecté, cette position indique l'origine de la

création du plasma amplificateur par le faisceau principal. La précision (sub 10 fs) avec laquelle nous déterminons la position « zéro » est suffisante car la durée du gain de la transition 4d-4p à 32,8 nm est de l'ordre de 10 ps à mi-hauteur avec un gain maximum atteint 3 ps après la création du plasma (cf chapitre2).

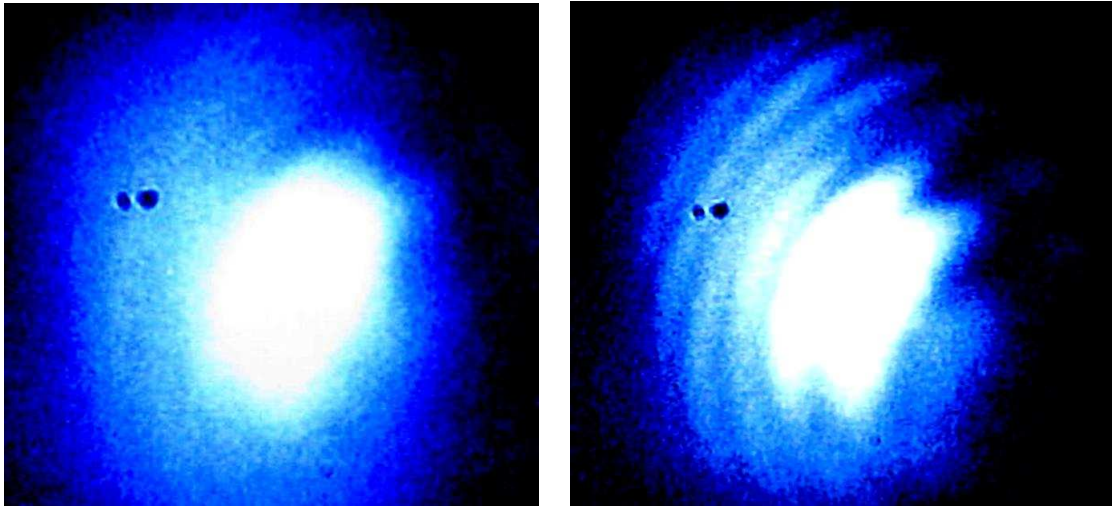


Figure 3.8 : Superposition spatiale des faisceaux infrarouge du « sonde » et du « pompe » quand ils sont non synchronisés (à gauche) et synchronisés (à droite).

### **3.1.2.3 Le spectrographe d'analyse**

Le diagnostic principal est un spectromètre à réseau par transmission disposé dans l'axe de l'émission laser à 32,8 nm. Il a été utilisé pour accorder spectralement l'harmonique que nous souhaitons amplifier pour la mettre à la même longueur d'onde que la transition laser de l'amplificateur. Il permet également de se rendre compte et de mesurer l'amplification de l'harmonique 25 à 32 nm.

Ce dispositif de mesure spectrale est constitué d'un miroir sphérique traité en or, d'un réseau à transmission, d'un filtre en aluminium de  $2 \times 0,15 \mu\text{m}$  d'épaisseur et d'une caméra CCD XUV rectangulaire. Le miroir sphérique a une longueur focale de 400 cm et un diamètre de 10 cm. Il est utilisé en incidence rasante ( $i = 80^\circ$ ) et pour imager la source sur la caméra CCD XUV dans le plan horizontal. Le réseau à transmission possède 2000 traits/mm en or et sa dimension est de 5 mm par 5 mm. A cause de sa fragilité, il repose sur une grille qui possède un pas de  $17 \times 17 \mu\text{m}^2$ .

Le spectromètre est schématiquement représenté sur la Figure 3.9. Considérant que le faisceau XUV arrive normal à la surface du réseau, la relation de dispersion s'écrit simplement sous la forme :

$$b \sin \theta = n \lambda$$

avec  $b$  le pas du réseau et  $n$  l'ordre du réseau.

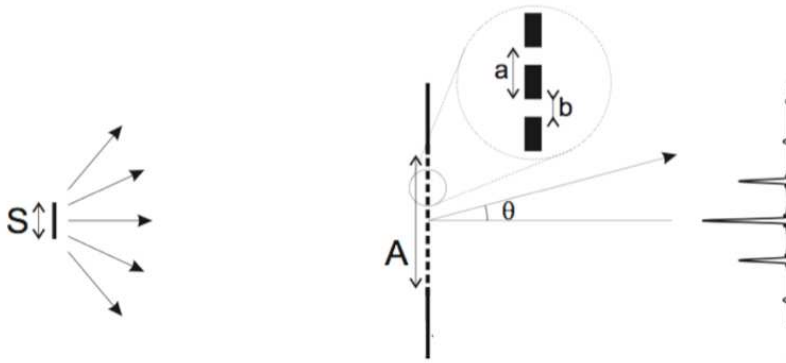


Figure 3.9 : Géométrie d'utilisation d'un réseau par transmission.

Compte tenu de l'incidence rasante sur le miroir sphérique (voir Figure 3.10) la relation de conjugaison s'écrit alors :

$$\frac{1}{u} + \frac{1}{v} = \frac{2}{R \sin \phi}$$

où  $R$  est le rayon de courbure du miroir et  $\phi$  l'angle de rasance.

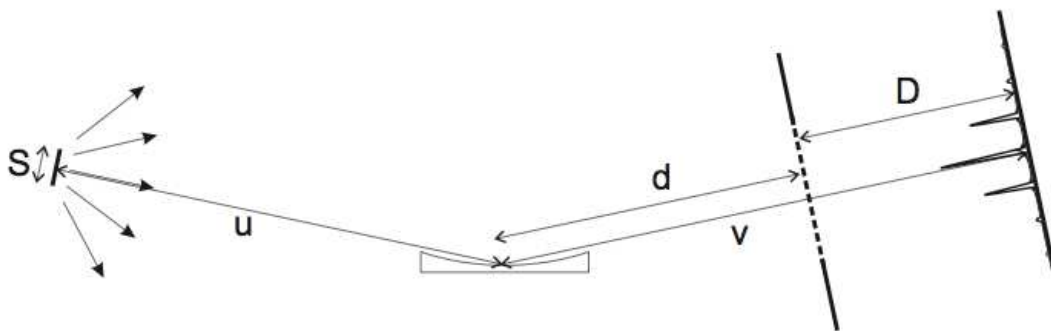


Figure 3.10 : Schéma complet du spectromètre par transmission utilisant une optique sphérique en incidence rasante.

## **3.2 Etude du laser XUV injecté en fonction des paramètres de génération**

Nous avons étudié l'amplification du rayonnement harmonique à 32,8 nm en fonction des paramètres influants sur l'amplificateur tels que la pression du gaz, la polarisation du faisceau pompe, la longueur du milieu et l'instant d'injection des harmoniques. Ces résultats sont présentés dans le paragraphe suivant.

### **3.2.1 Mesure de l'amplification à 32,8 nm**

Après avoir réalisé le couplage entre le faisceau harmonique et le plasma amplificateur nous pouvons commencer l'étude des paramètres d'injection. La Figure 3.11 montre trois spectres ; de bas en haut un spectre d'harmonique, un spectre de l'émission ASE et un spectre du laser XUV dans les conditions suivantes :

- La longueur de la cellule amplificatrice : 7,5 mm
- Le faisceau laser pompe est focalisé à l'intérieur de la cellule amplificatrice à 3,5 mm par rapport à la face avant
- Polarisation circulaire du faisceau de pompe
- Pression de Kr dans la cellule : 20 mbar
- Moment d'injection :  $\Delta\tau = 3$  ps

Nous observons une amplification très importante ; les pics visibles de part et d'autre de la raie du laser injecté sont provoqués par la diffraction sur la grille qui supporte le réseau. L'étude systématique de plusieurs paramètres d'optimisation de l'amplification que nous avons réalisée sera présentée dans la deuxième partie de ce chapitre.

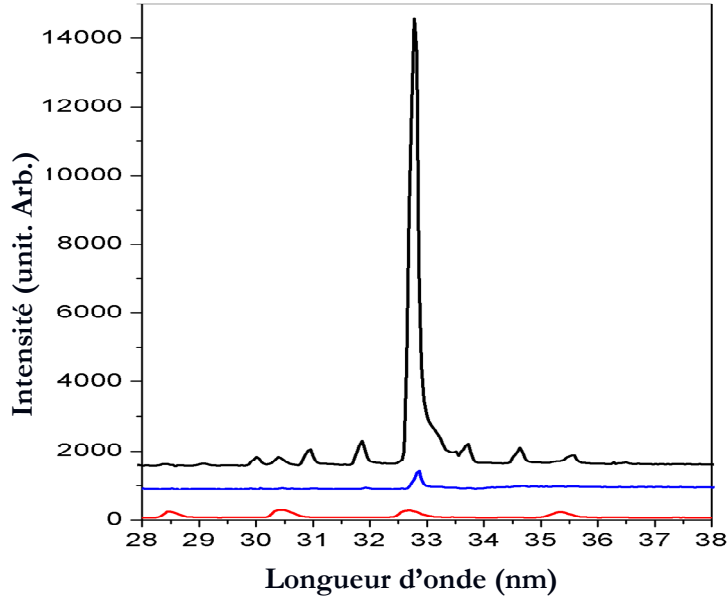


Figure 3.11 : Spectres expérimentaux des harmoniques (en rouge), de l'émission ASE (en bleu) et du laser XUV injecté (en noir). Les spectres sont décalés pour une meilleure observation.

Le signal harmonique pouvant varier significativement d'un jour à l'autre à cause des paramètres du laser infrarouge (énergie, spectre, durée), nous avons choisi de définir un critère permettant de caractériser objectivement l'amplification. Ce critère est le facteur d'amplification qui se définit comme suit :

$$\text{Facteur Amplification} = (E_{amp} - E_{HHG} - E_{ASE}) / E_{HHG} \quad (56)$$

où  $E_{amp}$  est l'énergie du laser XUV injecté,  $E_{HHG}$  l'énergie de l'harmonique à 32,8 nm et  $E_{ASE}$  l'énergie du laser XUV en régime ASE.

Pour calculer le facteur d'amplification, la méthode choisie consiste à définir une zone d'intégration commune aux trois types de spectres. Nous avons fait le choix d'intégrer le signal dans une gamme spectrale qui correspond à la largeur à mi-hauteur de la raie laser à 32,8 nm. Compte tenu de la faible résolution de notre spectromètre cette zone correspond à  $\Delta\lambda = 0,1$  nm, c'est-à-dire  $\Delta\lambda / \lambda \approx 3.10^{-3}$ . Nous verrons par la suite que la largeur spectrale du laser à 32,8 nm est bien plus étroite. De plus, nous avons considéré

que le couplage spatial entre le faisceau harmonique et le plasma n'est pas parfait. Dans le chapitre 5, nous verrons qu'il est de l'ordre de 60 % en énergie. Nous prendrons cet effet non négligeable en compte pour évaluer le facteur d'amplification mesuré.

Des exemples de spectres caractéristiques intégrés dans cette zone d'intégration commune (en blanc) sont présentés sur la Figure 3.12 (la zone d'intégration étant délimitée par les deux traits verticaux blancs). Les spectres d'harmoniques et de l'émission ASE sont mesurés au début de chaque série de mesure comme référence. Chaque mesure correspond à un signal accumulé sur 10 tirs laser pour le laser XUV injecté et l'émission ASE et sur 100 tirs pour les harmoniques.

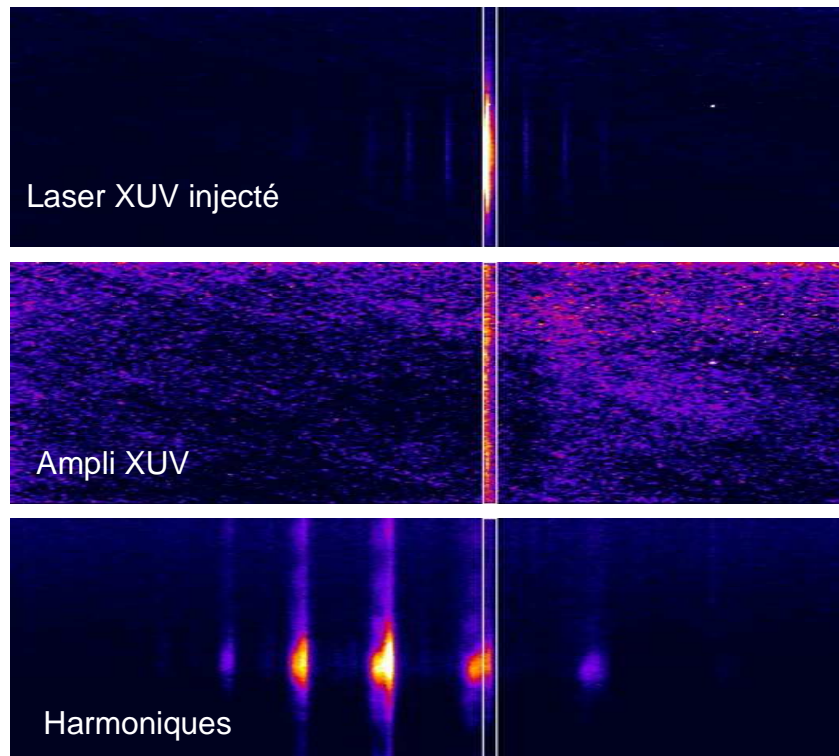


Figure 3.12 : Spectres expérimentaux des harmoniques (en bas), de l'émission ASE (au centre) et du laser XUV injecté (en haut). Les lignes blanches délimitent la zone d'intégration.



### 3.2.2 Influence de la longueur d'amplification

Nous étudierons ici comment se comporte l'intensité du laser injecté à 32,8 nm lorsque nous faisons varier la longueur de la cellule amplificatrice. Les mesures ont été réalisées dans les conditions suivantes :

- une pression de Krypton de 20 mbar
- une focalisation du laser infrarouge réalisée 3,5 mm après la face d'entrée de la cellule

Nous avons reporté sur la Figure 3.13 les résultats correspondant à deux séries de mesures réalisées pendant deux séances séparées d'une journée. Il nous a semblé intéressant de présenter ces résultats sur la même courbe, les conditions expérimentales étant identiques, le niveau de signal mesuré pour une cellule de 7,5 mm de long était très proche.

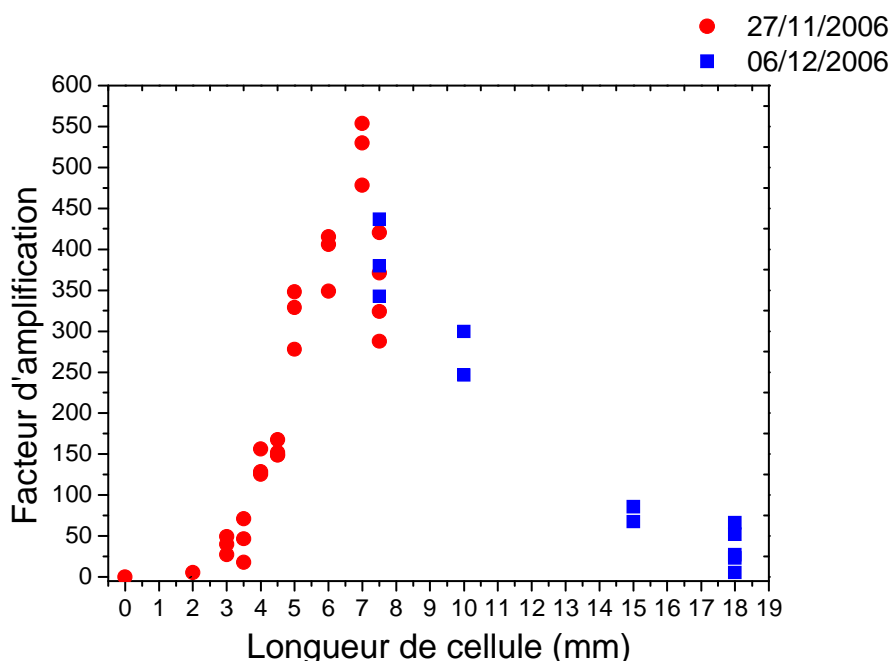


Figure 3.13 : Variation du facteur d'amplification en fonction de la longueur de la cellule. La longueur optimale se situe autour de 7 mm.

L'évolution de l'amplification du signal injecté en fonction de la longueur de cellule, présentée sur la Figure 3.13, met en évidence trois phases distinctes. Dans un premier temps, pour  $0 < L_{\text{cell}} < 2$  mm l'amplification est très faible. L'amplification apparaît vers  $L_{\text{cell}} = 3$  mm et croît jusqu'à 7 mm atteignant une valeur autour de 550 pour cette longueur de cellule. Pour  $L_{\text{cell}} > 7$  mm l'amplification décroît lentement jusqu'à disparaître pour une longueur de 18 mm.

Nous avons calculé avec le code COFIXE le profil bidimensionnel du coefficient de gain maximum. Afin de prendre en compte le plus fidèlement possible les conditions expérimentales, nous avons considéré que le profil de tache focale était la somme de deux gaussiennes. La première possède un waist de  $100 \mu\text{m}$  et contient 30 % de l'énergie totale et la deuxième a un waist de  $20 \mu\text{m}$  et contient 70 % de l'énergie totale. Nous rappelons que le laser est focalisé 3,5 mm après la face d'entrée de la cellule et que l'éclairement maximal du faisceau de pompe du plasma est de  $8.10^{17} \text{ W/cm}^2$ .

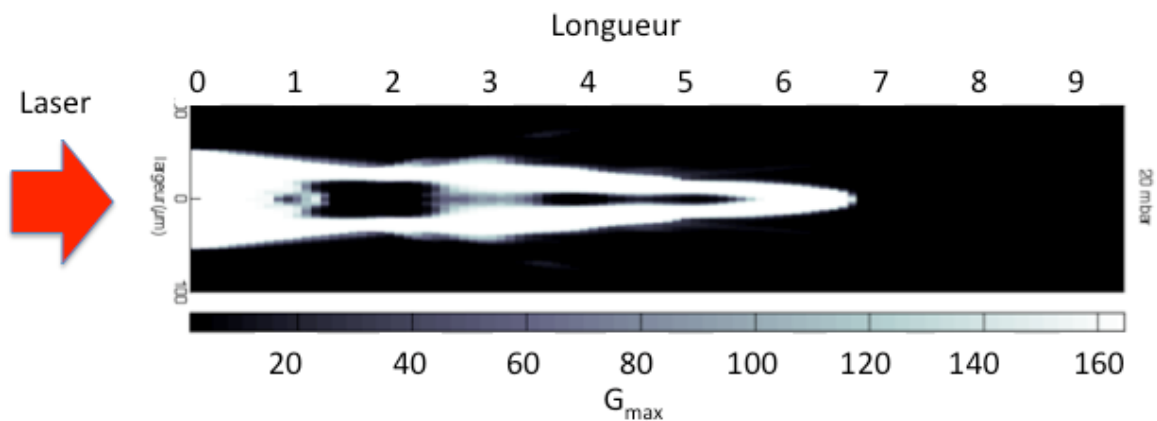


Figure 3.14 : Carte de gain maximum dans un plasma de krypton pour une pression de 20 mbar calculé avec le code OFI-PROP. Le laser va de la gauche vers la droite. L'échelle en niveau de gris correspond à la valeur du gain.

La Figure 3.14 montre que la zone amplificatrice du plasma est bien localisée sur l'axe du laser de pompe et que le coefficient de gain est quasiment constant dans toute la zone ayant le bon état de charge après le passage de l'impulsion laser IR de pompe. Le gain maximum est ici de  $165 \text{ cm}^{-1}$ . La zone au centre non amplificatrice correspond au plasma sur-ionisé ( $> \text{Kr}^{8+}$ ) alors que la zone extérieure non amplificatrice correspond à un plasma sous-ionisé ( $< \text{Kr}^{8+}$ ). Si nous considérons le profil temporel du gain montré sur la

Figure 3.20 dans ces conditions de densité, le gain moyenné sur sa durée est plutôt de  $41 \text{ cm}^{-1}$ . Ce calcul nous indique aussi que la longueur amplificatrice du plasma est, dans ces conditions, de densité de 7 mm, ce qui est en bon accord avec ce que nous avons mesuré et reporté sur la Figure 3.13. La Figure 3.14 montre aussi que les bords de la zone de gain sont francs et que la dimension transverse moyenne est de l'ordre de  $70 \text{ }\mu\text{m}$  de diamètre, ce qui est légèrement inférieur aux dimensions du faisceau harmonique à l'entrée du plasma (de l'ordre de  $100 \text{ }\mu\text{m}$  de diamètre). Nous verrons dans le chapitre suivant que cette spécificité des plasmas OFI va fortement influencer sur les qualités spatiales du faisceau laser injecté.

Finalement, il apparaît que la colonne amplificatrice ne remplit pas toute la longueur de la cellule de gaz et donc que le faisceau amplifié traverse aussi une longueur de plasma faiblement ionisé qui peut être absorbant à notre longueur d'onde (cf § 2.1.4.4).

Nous avons comparé le signal amplifié mesuré avec le résultat du calcul donné par la résolution de l'équation (55), en considérant que l'amplification n'a lieu que sur une longueur de 7 mm, en négligeant l'émission spontanée et en considérant la largeur spectrale de l'harmonique égale à  $0,1 \text{ nm}$  ( $\Delta\lambda/\lambda = 3.10^{-3}$ ). Le calcul que nous avons réalisé pour différents couples (gain,  $I_{\text{sat}}$ ) est confronté aux résultats expérimentaux sur la Figure 3.15.

Cette figure montre tout d'abord que l'augmentation de l'intensité en sortie d'amplificateur en fonction de la longueur amplificatrice, est bien reproduite par le calcul. Nous retrouvons une première phase d'amplification quasi nulle qui correspond au rétrécissement spectral de l'harmonique injectée, comme décrit à la fin du chapitre 2. Il s'en suit une phase d'amplification dont la pente dépend fortement du coefficient de gain et de l'intensité d'injection par rapport à l'intensité de saturation. Les calculs présentés sur la Figure 3.15 montrent que les résultats expérimentaux sont ajustés de façon satisfaisante par pour un coefficient de gain de l'ordre de  $27 \text{ cm}^{-1}$ .

Ce gain est inférieur au gain effectif ( $G = 41 \text{ cm}^{-1}$ ) calculé par le code de physique dans ces conditions de densité. De plus, ces valeurs de gain restent légèrement inférieures à celles mesurées il y a quelques années dans le cas d'un fonctionnement en régime ASE (estimé autour de  $78 \text{ cm}^{-1}$ ) [48].

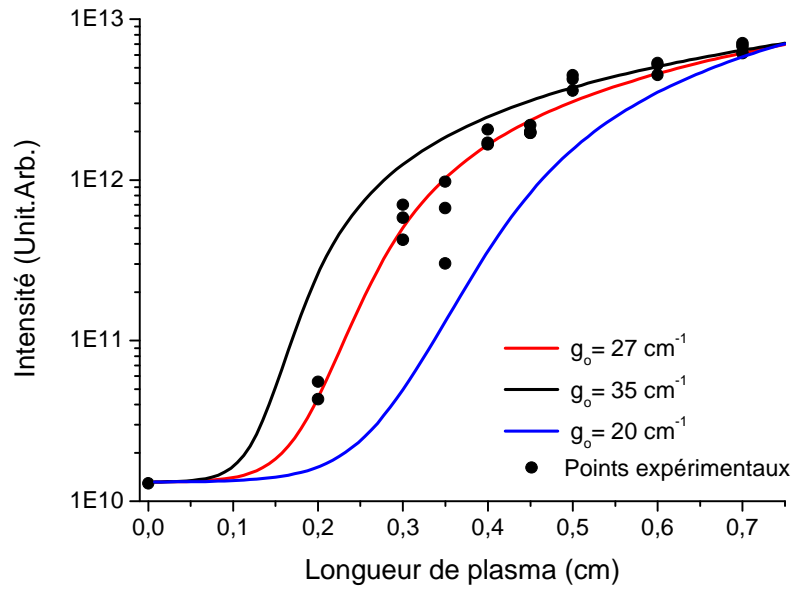


Figure 3.15 : Intensité intégrée spectralement d'un laser XUV en fonction de la longueur de l'amplificateur calculée pour trois valeurs de gain (20, 27, 35 cm<sup>-1</sup>). Le calcul réalisé avec un gain de 27 cm<sup>-1</sup> est en très bon accord avec nos mesures expérimentales (points en noir).

La Figure 3.14 montre aussi que la colonne amplificatrice ne couvre pas toute la longueur de la cellule de gaz et donc que le faisceau amplifié traverse une certaine longueur de plasma faiblement ionisé qui peut être absorbante. Nous avons donc pris en compte l'absorption du rayonnement à 32,8 nm afin de la comparer avec ce que nous observons expérimentalement pour une longueur de cellule supérieure à 7 mm [71]. Nous avons reporté le résultat de ce calcul sur la Figure 3.16 ainsi que les points expérimentaux de la Figure 3.13 pour  $L > 7$  mm. Nous observons que la prise en compte de la partie absorbante du plasma permet d'obtenir un bon accord avec la mesure de la diminution du facteur d'amplification pour  $L > 7$  mm. Ainsi, la longueur de la colonne amplificatrice a été fixée autour de 7 mm pour les toutes les mesures réalisées par la suite.

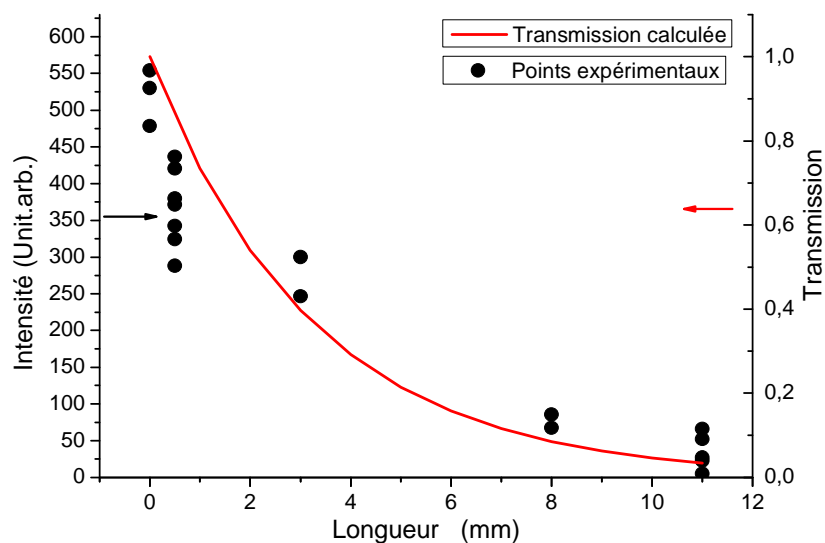


Figure 3.16 : Calcul de la transmission d'un rayonnement à 32,8 nm après le passage dans du krypton à 20 mbar d'une longueur comprise entre 0 et 11 mm (courbe rouge). Les points noirs sont les résultats expérimentaux du facteur d'amplification pour une longueur de cellule comprise entre 7 et 18 mm.

### 3.2.3 Influence de la densité sur l'amplification de la raie 4d-4p à 32,8 nm

Les propriétés amplificatrices du plasma dépendent fortement de la densité initiale de krypton. Pour un amplificateur fonctionnant en schéma collisionnel, une élévation de la densité implique directement une élévation de l'intensité de saturation et donc de l'intensité du signal mesuré. En contrepartie, en géométrie de pompage longitudinal, les effets délétères de propagation du laser infrarouge viennent contrebalancer les effets positifs d'une élévation de densité.

La dépendance du signal ASE à 32,8 nm en fonction de la pression de krypton est présentée sur la Figure 3.17. Les mesures ont été réalisées pour :

- une longueur de cellule de 7,5 mm
- la focalisation du laser infrarouge se situant 3,5 mm après la face d'entrée de la cellule

Le signal croît rapidement jusqu'à une pression optimale avant de décroître plus lentement. Le maximum du signal est observé autour de 25 mbar, ce qui correspond à une densité atomique de  $6,18 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ , la gamme de pression utile se situant entre 10 et 22 mbar. Ce résultat est en accord avec les précédentes mesures réalisées dans des conditions expérimentales similaires [48]. Comme le montre la Figure 3.17, le comportement en mode injecté est très similaire à celui de l'émission ASE. Nous observons une augmentation rapide du signal amplifié pour une pression de krypton supérieure à 15 mbar. La valeur optimale se situe entre 20 et 30 mbar. Ensuite, le signal chute plus lentement avec la pression.

La présence de cet optimum est la conséquence d'une compétition entre plusieurs effets. L'augmentation de densité provoque un accroissement du coefficient de gain et de l'intensité de saturation mais aussi comme le montre la Figure 3.18, change radicalement la propagation du faisceau laser qui pompe l'amplificateur. La réfraction causée par l'ionisation s'accroît avec la densité avec, comme conséquence directe, une diminution de la longueur d'amplification ainsi qu'un allongement de la longueur de réabsorption dans la zone la moins ionisée, en sortie de cellule amplificatrice.

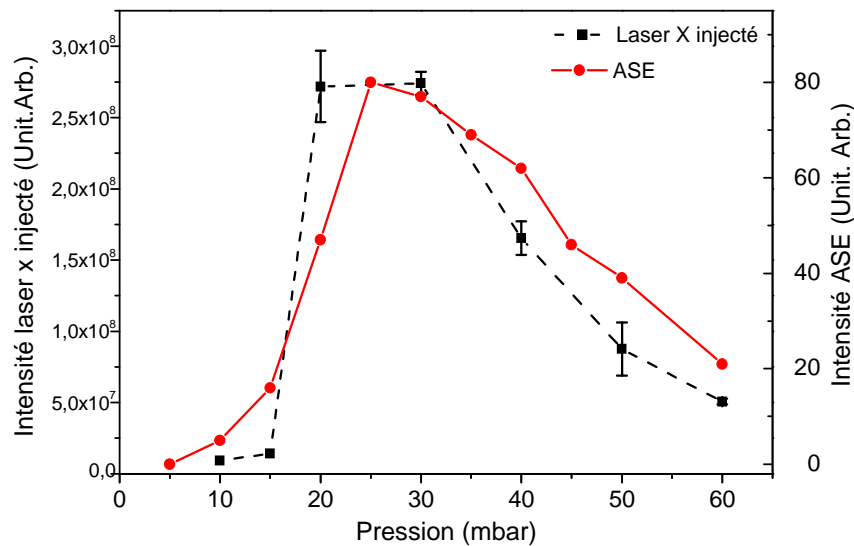


Figure 3.17 : Mesure du signal du laser XUV injecté (en noir) et de l'émission ASE (en rouge) en fonction de la densité atomique de krypton.

En utilisant le code COFIXE, nous avons étudié la variation de la longueur amplificatrice effective et du coefficient de gain en fonction de la pression de gaz. Les conditions laser sont identiques à celles décrites dans le paragraphe précédent. La Figure 3.18 montre des cartes bi-dimensionnelles du coefficient de gain pour différentes pressions (15, 20, 30 et 40 mbar). Nous observons que le gain maximum croît avec la densité du milieu et que la réfraction croissante du laser infrarouge avec la pression provoque une réduction de la longueur de l'amplificateur. La longueur amplificatrice est de 7,5 mm pour 15 mbar, 7 mm pour 20 mbar, 6 mm pour 30 mbar et 5 mm pour 40 mbar. En conséquence, la longueur de la zone absorbante du plasma augmente avec la densité de krypton. La Figure 3.18 montre aussi que, quelle que soit la densité atomique du krypton, la dimension transverse varie peu, autour de 70  $\mu\text{m}$  de diamètre en moyenne.

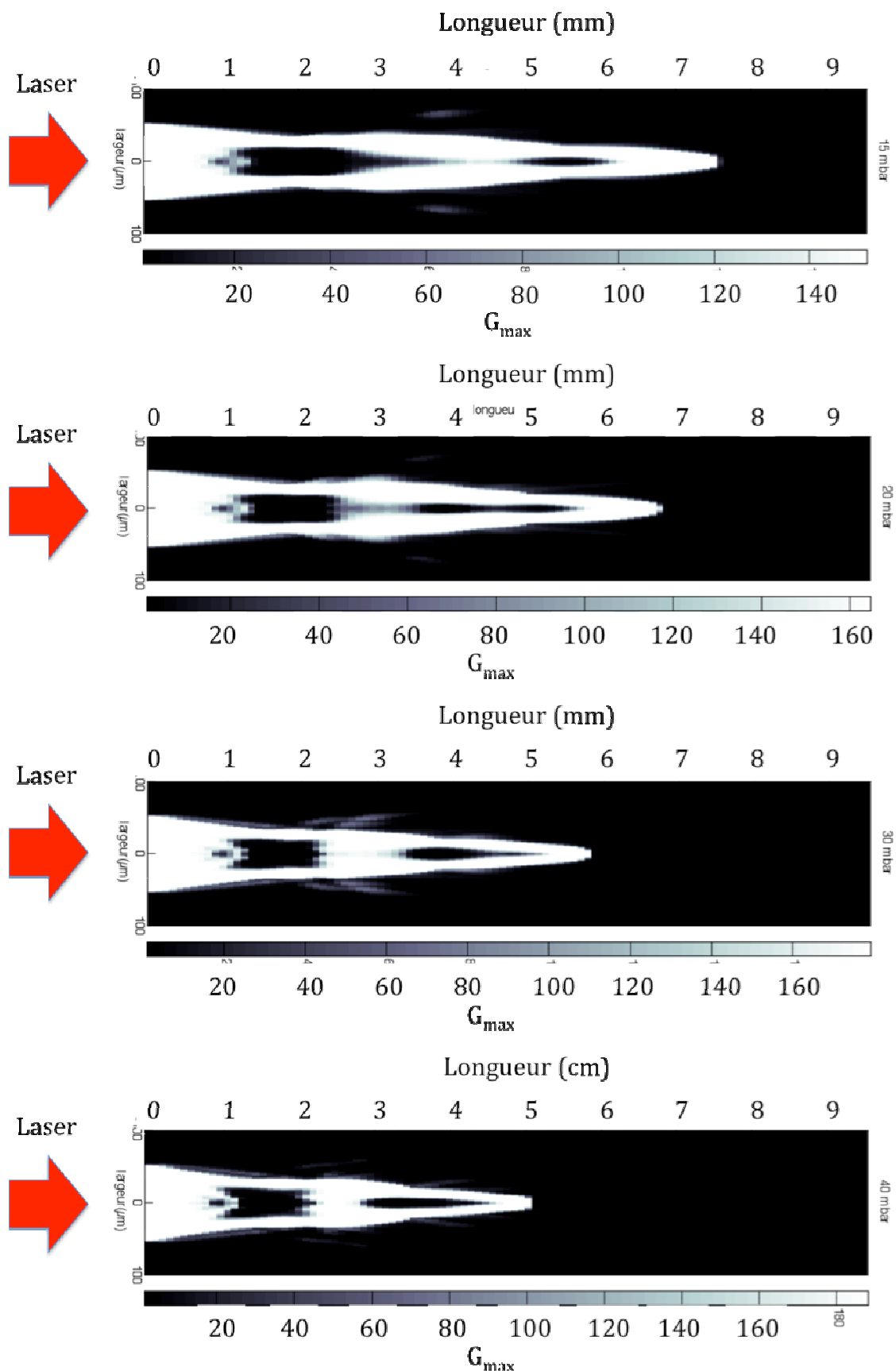


Figure 3.18 : Cartes de gain calculées dans un plasma de krypton pour différentes pressions : 15, 20, 30, 40 mbar.



Nous avons utilisé les longueurs d'amplification déduites des cartes de gain calculées sur la Figure 3.18 pour ensuite résoudre l'équation (55) et calculer l'intensité du laser à 32,8 nm pour différentes pressions de gaz. Nous avons fixé l'énergie de l'harmonique avant injection par rapport à  $I_{\text{sat}}$ , de façon à obtenir le facteur d'amplification expérimental ; pour cette série de données il est de 250 pour une longueur de 7 mm et une pression de 20 mbar. De plus, nous avons pris en compte les variations du gain et l'intensité de saturation calculées pour les différentes pressions.

La Figure 3.19 (a) montre les intensités du laser injecté calculées en fonction de la pression. Nous observons que le signal augmente régulièrement jusqu'à un optimum à 30 mbar avant de chuter pour les pressions plus élevées. Si nous ne prenons pas en considération l'absorption, le meilleur compromis entre valeur du gain et longueur d'amplification est obtenu pour une pression de krypton 1,5 fois supérieure à celle mesurée expérimentalement. Lorsque nous prenons en compte l'absorption, le calcul se rapproche sensiblement de ce qui est observé expérimentalement comme le montre la Figure 3.19 (b); l'intensité du signal à 32,8 nm augmente jusqu'à un optimum à 25 mbar puis diminue lentement jusqu'à 50 mbar. Ces résultats semblent indiquer que la réabsorption par le gaz résiduel ne doit pas être négligée et qu'il devrait être possible d'accroître le signal XUV en utilisant une pression de 30 mbar et une longueur de cellule de 6 mm.

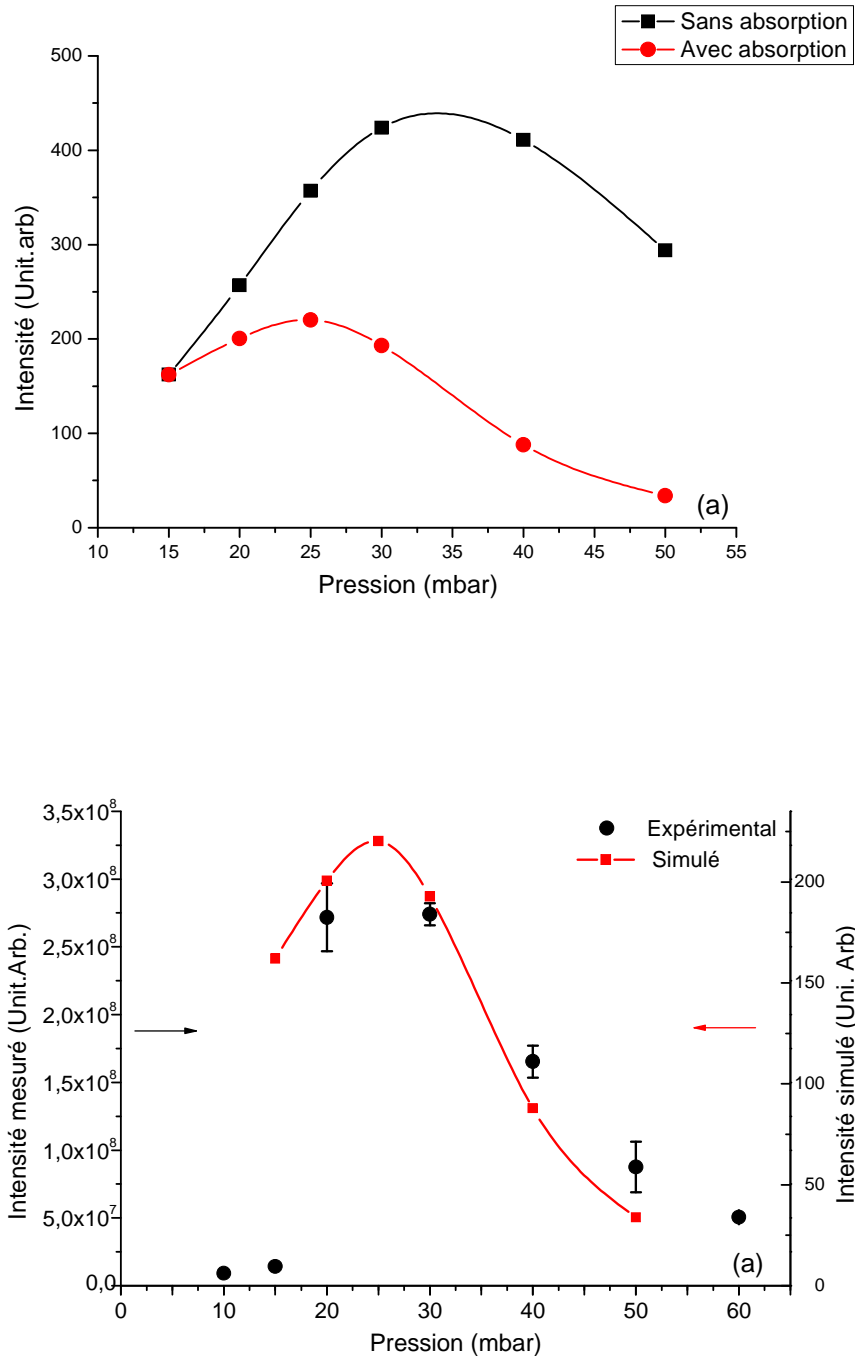


Figure 3.19 : (a) Simulation de l'amplification du laser XUV calculée par la méthode de Koch dans le cas sans (points noirs) et avec absorption (points rouges) du plasma non amplificateur (sous ionisé) (b), comparaison des résultats expérimentaux (points noirs) et la simulation (courbe en rouge) effectuée en prenant en compte l'absorption.

***Influence de la densité sur la dynamique du gain.***

En décalant le moment d'injection par rapport au pompage du milieu amplificateur, nous pouvons mesurer la dynamique temporelle de l'amplification en fonction de différents paramètres. Nous nous intéressons ici à l'influence de la densité de l'amplificateur sur la dynamique du gain. La Figure 3.20 montre le facteur d'amplification en fonction du délai pour différentes densités atomiques avec des pressions de krypton de 15 mbar, 20 mbar, 30 mbar et 40 mbar. Ces 4 courbes expérimentales montrent une forte amplification du signal harmonique qui varie en fonction du délai d'injection. Notons que le facteur d'amplification le plus élevé est obtenu pour une pression 20 mbar et vaut 250. Cependant, le facteur d'amplification à 30 mbar est aussi très proche de cette valeur. Quelle que soit la pression, l'évolution temporelle du gain montre quelques similitudes. Nous remarquons que, pour chaque mesure, le facteur d'amplification augmente rapidement à partir de 1 ps jusqu'à atteindre un maximum avant de décroître plus lentement. De plus, nous observons que, quand la pression augmente, la durée du gain diminue et que la valeur du gain maximum arrive plus tôt.

Nous avons confronté ces résultats aux courbes de gain de la transition 4d-4p calculées avec le code de physique atomique OFI-PROP (courbe en noir). Nous pouvons voir que les résultats théoriques et expérimentaux suivent les mêmes tendances ; le coefficient de gain croît avec la pression et la durée du gain est d'autant plus courte que la pression est élevée. Elle est de 11 ps (à mi-hauteur) à 15 mbar et passe à 9 ps (à 20 mbar) puis à 4 ps (à 40 mbar). Finalement, nous observons clairement que plus la densité atomique augmente, plus le maximum d'amplification arrive tôt. Ce comportement est une des conséquences de l'ionisation collisionnelle qui suit la création du plasma. En effet, la durée de vie du gain ici est limitée par la durée de l'ion lasant dans la zone active. Nous comprenons que cette sur-ionisation est plus importante et plus rapide pour les hautes densités, ce qui est observé expérimentalement.

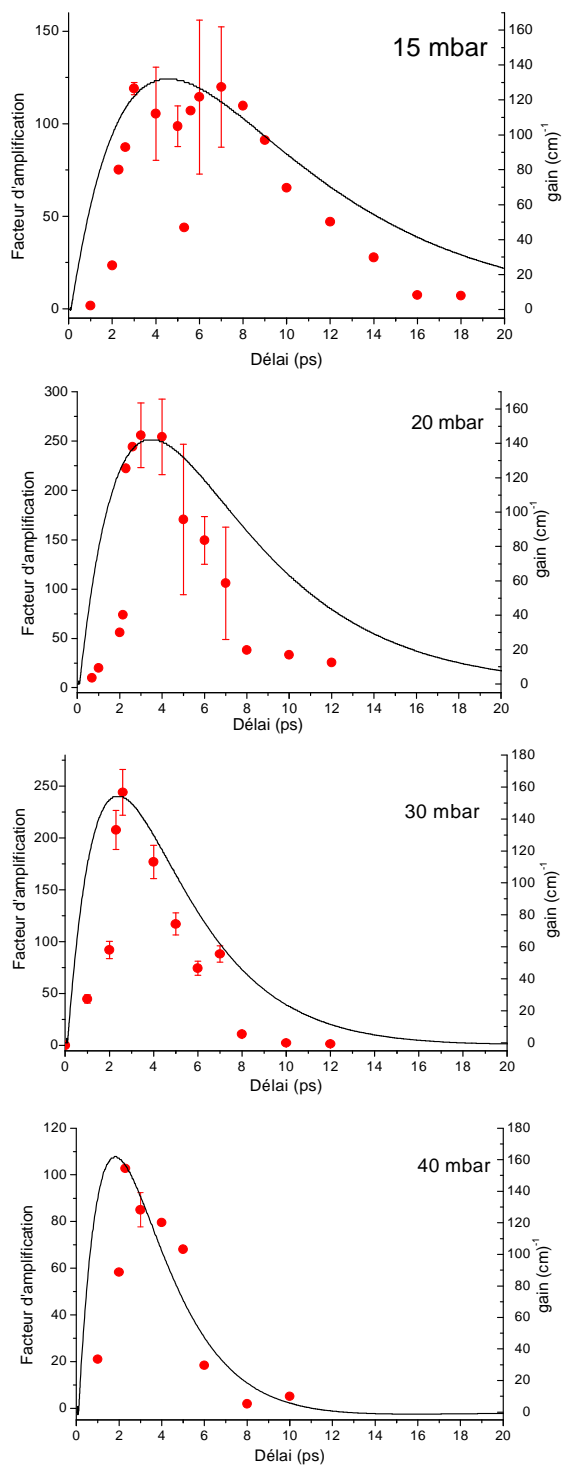


Figure 3.20 : Facteur d'amplification en fonction de la densité atomique de krypton dans la cellule (points rouges) confronté avec les courbes de gain calculés avec OFI-0D (courbe en noire).

### **3.2.4 Influence de la polarisation du laser de pompe sur l'amplification à 32,8 nm**

Comme nous l'avons montré dans le chapitre 2, lorsque nous sommes en pompage par excitation collisionnelle la température électronique du plasma contrôle le taux de pompage. Comme celui-ci dépend de la longueur d'onde du laser et de l'état de polarisation du champ électrique nous avons étudié ici la dépendance de l'amplification à 32,8 nm vis-à-vis de la polarisation du faisceau de pompe du plasma amplificateur. Pour cela nous avons utilisé une lame quart d'onde qui permet de faire varier l'ellipticité de la polarisation, de circulaire à linéaire.

La Figure 3.21 montre l'intensité du signal à 32,8 nm émis en régime ASE ainsi que le facteur d'amplification mesuré en régime injecté, en fonction de la polarisation du laser de pompe. Les conditions expérimentales sont les suivantes :

- Pression : 20 mbar de krypton
- Longueur de cellule : 7,5 mm
- Focalisation du laser IR : 3,5 mm à l'intérieur de la cellule par rapport à la face l'entrée

Pendant cette série de mesures, nous avons observé d'importantes fluctuations du signal à 32,8 nm dues aux variations d'énergie du laser de pompe. Néanmoins, que ce soit en régime ASE ou injecté, les comportements sont très similaires. Dans les deux cas, le maximum du signal est obtenu pour une polarisation circulaire ( $\phi = 0,5$ ) ce qui est en accord avec nos prédictions théoriques. Toutefois, il est surprenant de voir que l'intensité du signal à 32,8 nm chute très lentement quand on s'éloigne de la polarisation circulaire. En effet, nous avons reporté sur la Figure 3.22 (b) le résultat du calcul de l'évolution temporelle du gain maximal de la transition 4d-4p pour 3 états de polarisation ( $\phi = 0,5$ ,  $\phi = 0,3$ ,  $\phi = 0,2$ ). Si la durée du gain varie peu, sa valeur absolue varie de façon importante ; nous passons de  $g_{\max} = 10 \text{ cm}^{-1}$  pour  $\phi = 0,2$  (elliptique) à  $g_{\max} = 150 \text{ cm}^{-1}$  pour  $\phi = 0,5$  (circulaire). Ces variations importantes de gain donnent lieu à des variations non moins importantes du signal amplifié comme le montre le calcul de l'intensité à 32,8 nm obtenu en mode injecté présenté sur la Figure 3.21. Ce calcul est réalisé avec les conditions d'injection identiques à celles du paragraphe précédent, c'est-à-dire pour un facteur

amplification de 250, un gain de  $27 \text{ cm}^{-1}$  pour une polarisation circulaire. Nous avons pris en compte les variations du gain et les intensités de saturation calculées (OFI-0d) pour différents états de polarisation du laser de pompe représenté sur la Figure 3.22. Le résultat du calcul présenté sur la Figure 3.21(simulation) montre que le signal n'est pas amplifié sur une plage d'ellipticité (entre  $\phi = 0$  et  $\phi = 0,25$ ) et ce n'est pas ce que nous observons expérimentalement. La plage utile de polarisation calculée est comprise entre 0,25 et 0,75 alors qu'expérimentalement elle couvre quasiment tous les états de polarisation ( $\phi$  entre 0 et 1). Comme nous l'avons montré au chapitre 2, cette faible plage de fonctionnement calculée est la conséquence de la faible énergie des électrons issus de l'ionisation quand la polarisation devient proche de la polarisation linéaire. Compte tenu des résultats expérimentaux, il semble donc que l'énergie des électrons de pompe ait été sous-estimée par le calcul.

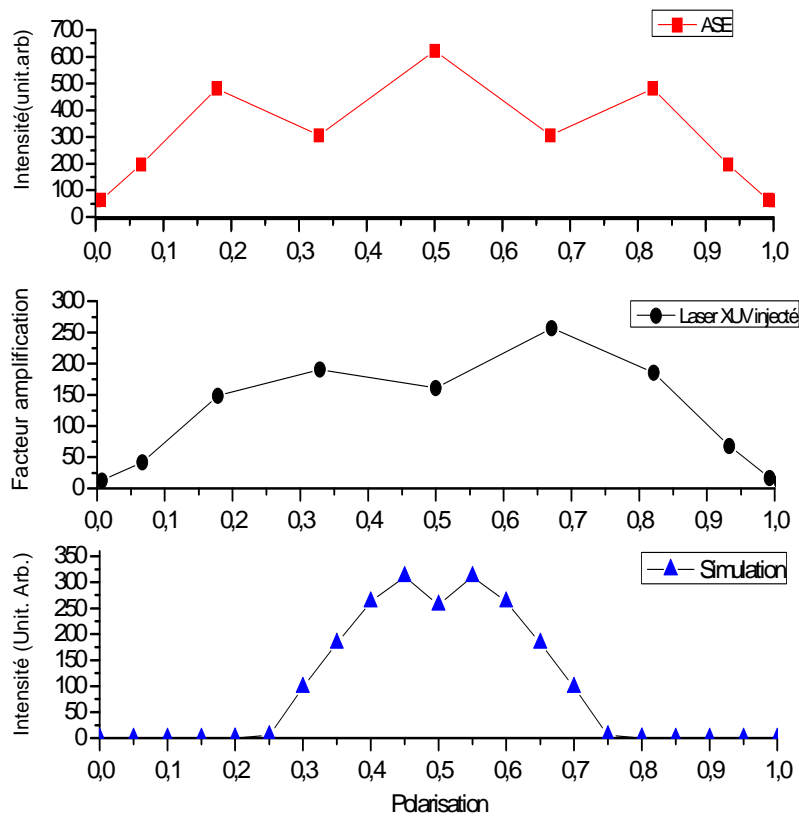


Figure 3.21 : Signal de l'émission ASE (courbe en rouge), coefficient d'amplification (courbe en noire) et simulation du laser XUV injecté en fonction de la polarisation. Dans les trois cas, le maximum est obtenu une polarisation proche de celle totalement circulaire.

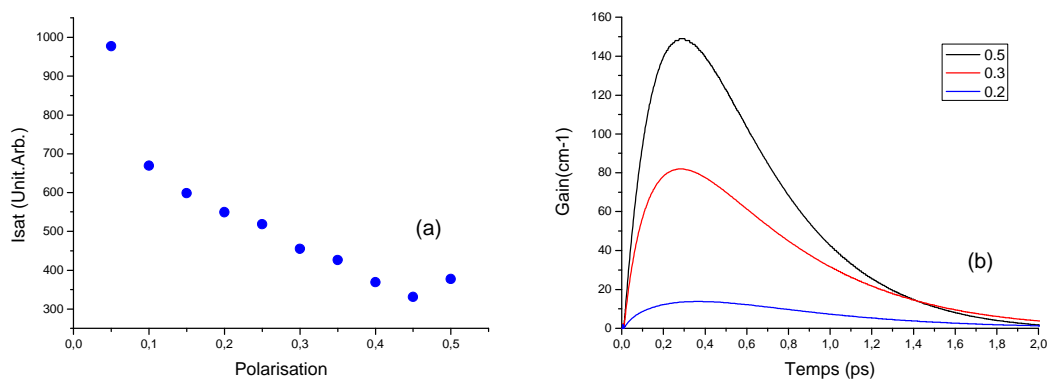


Figure 3.22 : (a) Intensité de saturation et (b) Courbe de gain en fonction de la polarisation du laser de pompe calculé par le code de physique atomique COFIXE.

## Conclusion

Les travaux présentés dans ce chapitre ont permis d'enrichir notre connaissance des paramètres importants pour l'amplification d'harmonique dans un plasma amplificateur OFI.

La mesure du signal amplifié en fonction de la longueur de la cellule, a permis d'estimer le coefficient de gain  $g$  autour de  $27 \text{ cm}^{-1}$  et une longueur de saturation de 3 mm. Si les gains calculés sont légèrement supérieurs, l'évolution de l'amplification en fonction de la longueur de cellule est bien reproduite par nos calculs quand on considère le rétrécissement spectral dû à l'amplification ainsi que l'absorption par le gaz résiduel pour les grandes longueurs de cellule.

L'influence de densité de l'amplificateur sur le signal amplifié et la dynamique du gain est, dans les grandes lignes, plutôt bien comprise. Les mesures ont montré que la durée du gain diminue avec la pression et qu'il faut injecter les harmoniques 3 ps après la création du plasma pour avoir une amplification optimum. Cet effet est aussi observé dans les résultats de la simulation obtenue par le code de physique atomique OFI-0D. Une autre étude numérique montre que la longueur du milieu amplificateur diminue avec la pression, augmentant ainsi le phénomène d'absorption.

Enfin, nous avons étudié l'influence de la polarisation du laser de pompe sur l'amplification du laser XUV. Les résultats ont montré que l'amplification est maximale pour une polarisation proche de la polarisation circulaire. Mais contrairement à ce que peuvent montrer les simulations, nous observons tout de même une amplification, faible certes, avec des polarisations presque linéaires. Il est possible que les simulations sous-estiment l'énergie cinétique que peuvent acquérir les électrons avec une polarisation proche de linéaire.



---

## **Chapitre 4 : Caractérisation spectro-temporelle du laser XUV OFI injecté par harmonique**

La durée d'émission la plus courte réalisable pour un plasma de laser XUV donné dépend de la largeur et du profil spectral de l'émission. Plus celle-ci est spectralement large, plus la durée ultime de l'impulsion laser XUV sera brève. Or, un des points importants et singuliers de l'amplification d'harmonique dans un amplificateur plasma est la très grande différence entre la largeur spectrale des harmoniques ( $\Delta\lambda/\lambda = 10^{-2}$ ) et celle attendue pour le gain de l'amplificateur plasma (qq  $\Delta\lambda/\lambda = 10^{-5}$ ). Cette différence aura un impact non seulement sur l'efficacité de couplage entre l'harmonique et l'amplificateur mais aussi, et même surtout, sur la durée du rayonnement après amplification. En effet, comme nous le confirmerons dans les mesures, la largeur spectrale du gain de notre amplificateur à Krypton XI est environ 1000 fois plus étroite que celle du rayonnement incident.

La détermination expérimentale de la largeur spectrale est donc essentielle pour estimer la proximité de la durée des impulsions à la limite de Fourier. Cette connaissance est également importante pour comprendre les mécanismes d'amplification des lasers XUV en mode injecté. Etant donné la finesse de raie attendue, sa détermination expérimentale utilisera des techniques expérimentales inspirées de la spectroscopie par transformée de Fourier. Elle sera ainsi couplée à la mesure de la longueur de cohérence temporelle du laser XUV.

Dans ce chapitre nous présenterons une série de mesures de la cohérence temporelle qui repose sur la mesure de la visibilité de franges d'interférence de l'harmonique amplifiée en fonction de la différence de marche introduite entre les deux bras d'un

interféromètre [105, 106, 107]. Cette étude a été réalisée en collaboration avec des collègues du LIXAM et du Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique (LCFIO) qui ont développé un interféromètre approprié pour ce type de mesures. Après avoir rapidement décrit le principe et le montage expérimental relatif à cette mesure, nous présenterons les mesures de cohérence temporelle (voir Annexe A) de notre laser injecté à 32,8 nm pour différents paramètres de génération. Ces résultats seront discutés et comparés aux estimations d'un modèle théorique.

## **4.1 Dispositif expérimental**

Les mesures de la cohérence temporelle du laser XUV injecté ont été réalisées à l'aide d'un interféromètre à bi-dièdre [108]. L'interféromètre est placé dans l'axe du faisceau à une distance de 2,15 mètres de la source. Comme le montre la Figure 4.1, pour introduire une différence de marche entre les deux bras de l'interféromètre, les deux dièdres sont mobiles l'un par rapport à l'autre. La différence de marche  $\ell$  entre les deux dièdres est introduite en translatant avec une grande précision mécanique l'un des deux dièdres dans la direction verticale. Les deux dièdres sont inclinés l'un par rapport à l'autre d'un angle  $\theta$  pour permettre le recouvrement des deux demi-faisceaux XUV. Plus l'angle  $\theta$  entre les deux dièdres est petit plus l'interfrange est grand. En contrepartie, le champ d'interférence diminue.

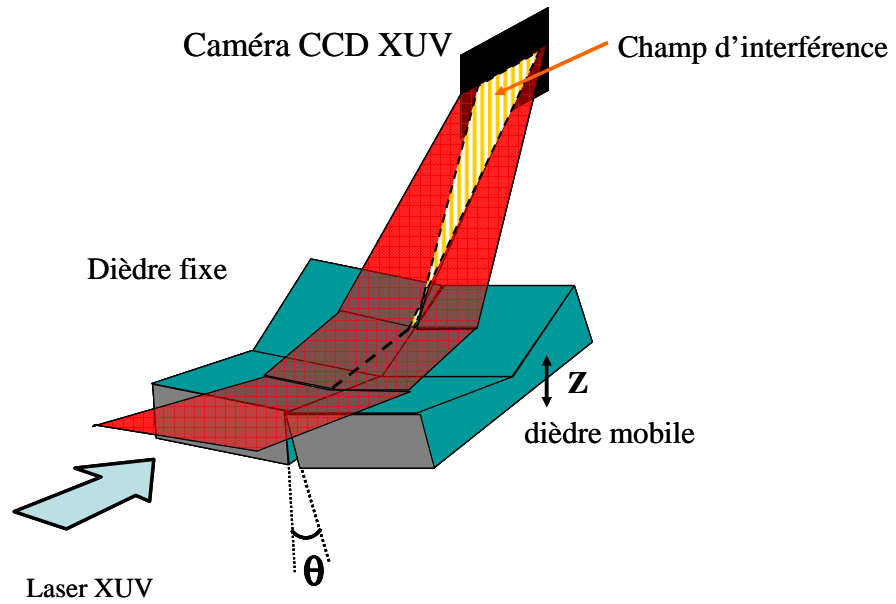


Figure 4.1 : Principe de l'interféromètre à bi-dièdres. Un faible angle de basculement,  $\theta$ , a été introduit entre les deux miroirs. Le faisceau incident est alors divisé en deux sous faisceaux qui se recouvrent en aval de l'interféromètre. Le champ d'interférences correspond à la zone de recouvrement du faisceau.

L'angle de rasance utilisé,  $\alpha = 6^\circ$ , assure une réflectivité importante du rayonnement XUV. Un autre miroir de renvoi en silice, fonctionnant aussi en incidence rasante ( $\alpha = 6^\circ$ ) est utilisé pour ramener le faisceau dans la direction de l'axe horizontal comme le montre la Figure 4.2. Les franges d'interférence sont ensuite enregistrées sur une caméra CCD X-UV (Andor  $1024 \times 1024$  pixels mesurant  $13 \mu\text{m}$  chacun). Dans la configuration d'origine de l'interféromètre, la caméra était fortement inclinée ( $9^\circ$ ) par rapport à l'axe de l'expérience pour augmenter le nombre de pixels de la caméra dans l'interfrange. Cependant nous nous sommes aperçu qu'avec un angle d'incidence de  $9^\circ$ , le chip de la caméra CCD (en silicium) agissait comme un miroir, ce qui avait comme conséquence de réduire significativement le niveau de signal sur le détecteur. Il faut souligner que toutes les mesures présentées dans ce chapitre sont « monocoup » car les variations importantes de pointé de la source laser injecté, que nous allons présenter dans le chapitre 5, font qu'il était impossible d'accumuler des tirs successifs sans dégrader la visibilité des franges car l'interféromètre est très sensible aux variations de pointé.

Afin de trouver le meilleur compromis entre rapport signal sur bruit et nombre de pixels par frange, nous avons donc essayé plusieurs configurations. Nous avons tout

d'abord disposé la caméra sous un angle  $\beta = 45^\circ$  puis finalement en incidence normale à l'axe du faisceau. L'alignement du dispositif est réalisé par un laser Hélium Néon à 632 nm. Les caractéristiques de l'interféromètre sont résumées dans le tableau ci-dessous.

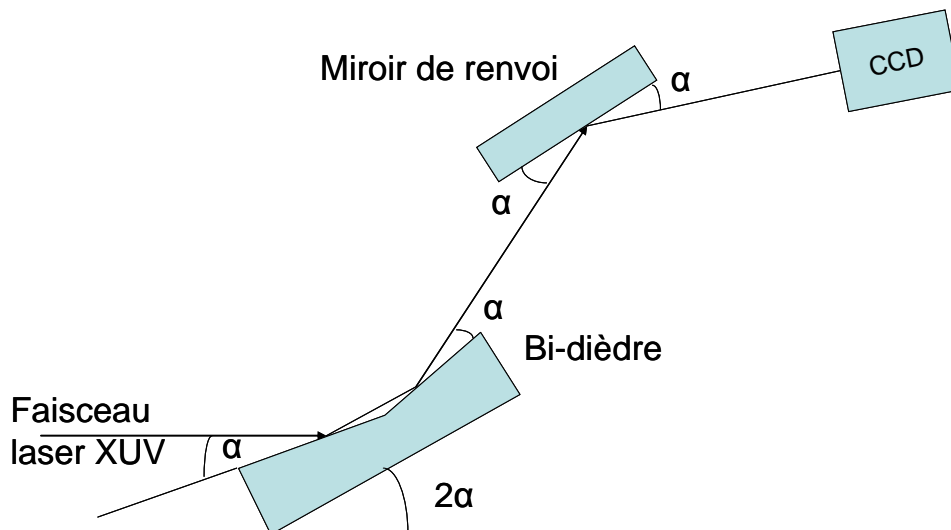


Figure 4.2 : Vue de profil de l'interféromètre.  $\alpha$  est l'angle de rasance du faisceau incident sur les optiques en silice.

<b>Lo</b>	longueur d'un dièdre	<b>80 mm</b>
<b>La</b>	largeur d'un dièdre	<b>15 mm</b>
<b><math>\theta</math></b>	Angle entre les deux miroirs	<b><math>6^\circ</math></b>
<b><math>\alpha</math></b>	Angle de rasance du faisceau incident	<b>3,2 mrad</b>
<b><math>\varepsilon</math></b>	Angle entre les deux faisceaux réfléchis par le bi-dièdre	<b>Variable : qq mrad</b>
<b><math>\beta</math></b>	Angle d'inclinaison de la caméra	<b>45 et <math>90^\circ</math></b>
<b>i</b>	Interfrange vu par la caméra	$i = \frac{\lambda}{\varepsilon \sin \beta}$
<b>z</b>	Translation verticale du dièdre mobile	
<b><math>\ell</math></b>	Différence de marche entre les deux faisceaux	$\ell = 2z \sin(2\alpha)$

Tableau 4-1 : Caractéristiques et relations fondamentales de l'interféromètre à bi-dièdre.

## **4.2 Mesures de la cohérence temporelle**

Les résultats que nous présentons ont été obtenus au printemps 2006. Les mesures ont été réalisées uniquement dans le cas du régime injecté. En effet, le signal de l'émission ASE et du faisceau harmoniques non amplifié étaient trop faibles au niveau du détecteur pour obtenir des résultats exploitables. Au cours de l'expérience, plusieurs séries de mesures interférométriques ont été effectuées pour différents paramètres, comme la longueur de la cellule amplificatrice. Les paramètres expérimentaux de création du plasma amplificateur sont résumés dans le tableau suivant :

Délai entre la création du plasma et l'injection des harmoniques	3 ps
Longueur de la cellule amplificatrice	Entre 3,5 et 7,5 mm
Pression de gaz	Entre 20 et 40 mbar
Energie du laser IR pour la génération du plasma amplificateur	Entre 0,4 et 0,6 J

Tableau 4-2 : Paramètres de génération du laser à 32,8 nm pour les mesures présentées dans ce chapitre.

### **4.2.1 Le cas optimal**

Les mesures présentées dans ce paragraphe ont été réalisées avec le détecteur incliné d'un angle de  $45^\circ$  par rapport à l'axe de l'interféromètre. Les interférogrammes présentent un interfrange mesuré de 59  $\mu\text{m}$ , ce qui correspond à 4,5 pixels sur la caméra CCD. La Figure 4.3 montre un exemple d'interférogramme obtenu dans ces conditions pour une différence de marche nulle, ainsi que le traitement pour la mesure de visibilité.

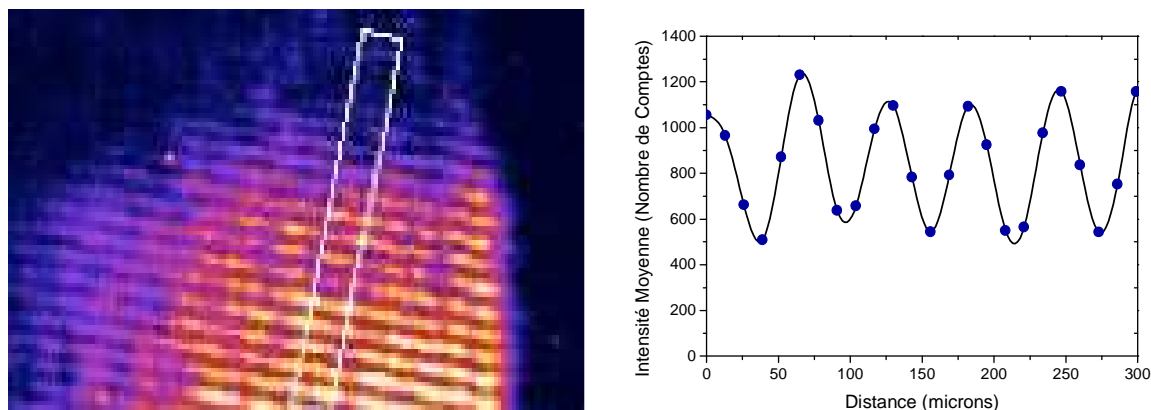


Figure 4.3 : La figure à gauche est un agrandissement de la zone d'interférence. Le rectangle blanc représente la zone d'intégration utilisée pour la mesure de la visibilité. A droite, nous avons le profil des franges le long de cette zone d'intégration.

La Figure 4.4 montre la mesure de visibilité des franges du laser XUV injecté en fonction de la différence de marche entre les deux bras de l'interféromètre dans le cas d'une cellule de 7 mm et une pression de 30 mbar. Les barres d'erreurs correspondent aux fluctuations tir à tir de la mesure du contraste. Nous remarquons que la visibilité maximale des franges, pour une différence de marche nulle, est relativement faible (de l'ordre de 30 à 35 %) alors que nous allons montrer dans le chapitre suivant que le laser XUV injecté possède une bonne cohérence spatiale. Ceci peut être dû au fait que l'interfrange ne se compose que de 4 pixels sur la caméra, ce qui entraîne une perte d'information. De plus, à cause de la difficulté à aligner de façon précise le laser XUV injecté dans l'interféromètre, la zone d'interférence s'est retrouvée sur le bord de la caméra. Et donc, il est très possible que la partie la plus cohérente du faisceau se soit retrouvée en dehors du détecteur. La Figure 4.4 montre que la visibilité décroît lentement lorsque la différence de marche augmente, puis plus rapidement à partir de 2,5 ps. Pour caractériser cette évolution, nous avons effectué une régression par une fonction gaussienne décroissante qui semble suivre les points expérimentaux. Toutefois, l'approximation gaussienne n'est pas idéale car elle rend peu compte de la chute rapide de la visibilité pour des délais supérieurs à 7 ps.

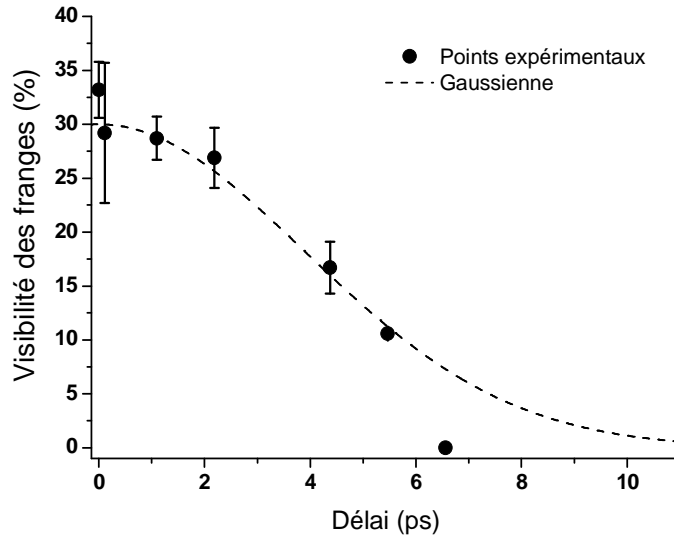


Figure 4.4 : Visibilité des franges d'interférence en fonction du délai entre les deux bras de l'interféromètre. La courbe en pointillée représente le tracé d'une gaussienne qui suit les points expérimentaux.

En utilisant le théorème de Wiener-Khintchine à partir des fonctions analytiques qui suivent au mieux les points expérimentaux, nous pouvons remonter à la largeur de la raie du faisceau harmonique amplifié à partir de l'évolution de la visibilité. Pour une fonction gaussienne décroissante de la forme :

$$C(\tau) = A \exp\left(-\frac{\tau^2}{\tau_c^2}\right) \quad (57)$$

où  $\tau_c$  est le temps de cohérence. Nous déterminons  $\Delta\nu$  la largeur à mi-hauteur du profil spectral à partir de l'évolution gaussienne du contraste des franges. D'après le théorème de Wiener-Khintchine, si le module de la fonction d'autocorrélation est de la forme  $|\gamma(\tau)| = A \exp\left(-\frac{\tau^2}{\tau_c^2}\right)$  alors la densité spectrale de puissance du rayonnement possède un profil gaussien qui s'écrit :

$$\rho_G(\nu) = K_G \sqrt{\pi} \tau_c \exp\left(-\pi^2 \tau_c^2 (\nu - \nu_0)^2\right) \quad (58)$$

avec  $K$  une constante de normalisation et  $\nu_0$  la fréquence centrale de la raie laser XUV. Nous pouvons donc écrire la largeur à mi-hauteur de la raie comme suit :



$$\Delta\nu = \frac{2 \sqrt{\ln 2}}{\pi \tau_c} \quad (59)$$

La valeur du temps de cohérence  $\tau_c$ , qui est donnée par la régression sur les points, est ici de  $5,4 \pm 0,3$  ps.

La valeur de  $\tau_c$  correspond à la largeur en fréquence :

$$\Delta\nu = 9,9 \pm 0,6 \cdot 10^{10} \text{ Hz}$$

Exprimée en longueur d'onde, la largeur de raie est égale à  $\Delta\lambda = 3,5 \pm 0,2 \text{ m}\text{\AA}$ , ce qui correspond à un rapport  $\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = 1,08 \pm 0,06 \cdot 10^{-5}$ .

Il est intéressant de comparer cette valeur avec les temps caractéristiques du gain de la transition laser. Comme nous l'avons vu dans le chapitre 3, la mesure du gain du plasma amplificateur a été effectuée en faisant varier le délai entre le moment où l'on a créé le plasma amplificateur et le moment où l'on injecte le faisceau harmonique [109]. Nous rappelons que l'amplification débute  $\Delta t = 1$  ps après la création de l'amplificateur, qu'elle est maximale ( $\times 180$ ) pour  $\Delta t = 3$  ps avant de chuter plus lentement jusqu'à devenir nulle pour  $\Delta t = 8$  ps (Figure 4.5). Le moment du plus fort gain ( $\Delta t = 3$  ps) correspondant au moment de l'injection des harmoniques, la durée d'impulsion maximale du laser XUV injecté sera limitée par la durée du gain après l'injection des harmoniques, qui est de 5 ps pour une pression de krypton de 30 mbar. Autrement dit, la durée du gain et donc, la durée maximale de l'harmonique amplifiée, est ici de 5 ps, valeur quasi identique avec la mesure du temps de cohérence. Ce résultat montre que l'harmonique amplifiée à 32,8 nm possède une cohérence longitudinale totale. De plus, la limite de Fourier de l'impulsion avec le même profil spectral donne une impulsion ayant un profil gaussien avec une durée à mi-hauteur égale à 4,8 ps. Cette valeur est en accord avec la limite maximale de la durée de l'impulsion déduite de l'étude de la dynamique du gain présentée sur la Figure 4.5. Notre laser injecté à 32,8 nm fonctionne donc en limite de Fourier, ce qui signifie que sa durée est essentiellement déterminée par la largeur spectrale du gain de la transition laser.

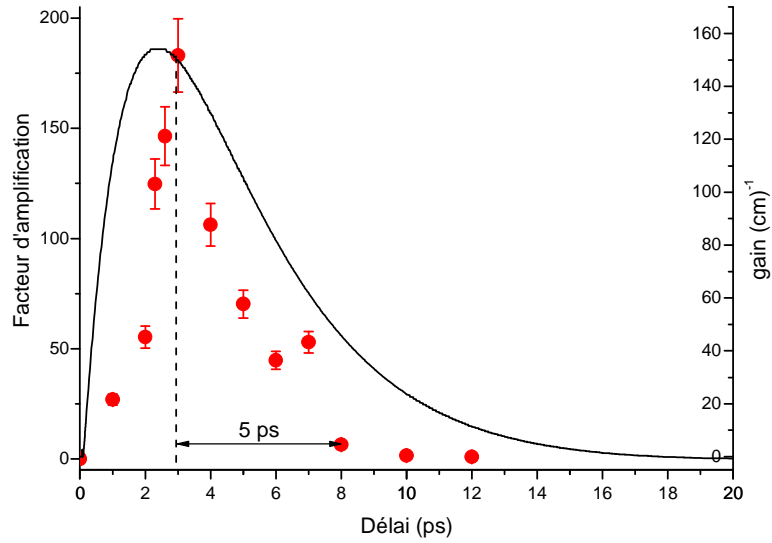


Figure 4.5 : Amplification de l'harmonique en fonction du délai entre le moment où l'on crée le plasma amplificateur et l'arrivée des harmoniques dans ce plasma. Chaque point correspond à la moyenne de différents tirs et les barres d'erreurs correspondent à la déviation standard. La courbe en noir correspond au gain calculé par le code OFI-0d.

#### 4.2.1.1 Modélisation

Pour modéliser l'effet du milieu amplificateur sur le spectre harmonique amplifié, nous avons vu dans le chapitre 2 qu'il existait deux types d'élargissement :

- L'élargissement homogène déterminé par la durée de vie des différents niveaux intervenant dans la transition :

$$\Delta\lambda_L = 5 \text{ m}\dot{\text{A}}$$

- L'élargissement inhomogène qui tient compte uniquement dans notre cas de l'élargissement Doppler qui est lié à l'agitation thermique des ions émetteurs et qui conduit à un profil gaussien :

$$\Delta\nu_D = 7m\dot{\text{A}}$$

De plus, nous avons tenu compte de l'effet du gain sur la largeur de raie en adaptant le modèle développé par Koch et al. [110] que nous avons présenté dans le chapitre 2. En utilisant ces hypothèses, nous avons modélisé l'évolution du spectre avec la longueur  $L$  de l'amplificateur. L'énergie des harmoniques par rapport à  $I_{\text{sat}}$  a été calculée de telle sorte à obtenir un facteur d'amplification de 180 pour une longueur  $L = 7,5$  mm.

Le résultat de ce calcul est présenté sur la Figure 4.6. La simulation montre que la largeur spectrale diminue rapidement avec la longueur de l'amplificateur jusqu'à ce que le régime de saturation soit atteint (environ  $L = 3$  mm). La largeur spectrale diminue alors très lentement, et aucun rélargissement par la saturation n'est observé en raison de l'importante contribution de l'élargissement homogène [110]. A la sortie du plasma ( $L = 7,5$  mm), la largeur spectrale calculée du laser XUV injecté est de  $\Delta\lambda = 3.55 \text{ m}\text{\AA}$  à mi-hauteur, ce qui est en bon accord avec l'expérience. Sur cette même figure, j'ai aussi reporté les résultats expérimentaux obtenus pour des longueurs de cellule de 5 et 3,5 mm (voir paragraphe suivant) qui sont aussi en bon accord avec la simulation.

D'après ce modèle, la faible valeur de la largeur spectrale, ainsi que la bonne valeur de la cohérence résultent de la faible valeur des effets d'élargissement homogènes et inhomogènes, ce dernier point étant lié à la faible température des ions lasants. En outre, le modèle montre une importante contribution de l'élargissement homogène dont la valeur est liée à la durée de vie de transition des niveaux. Cela pourrait expliquer que la limite de la durée d'impulsion donnée par la limite de Fourier (4,7 ps) est proche de la durée de vie totale du gain (5 ps). Cette différence sera probablement plus importante dans le cas des plasmas avec des températures ioniques plus élevées et de forts élargissements inhomogènes comme dans les plasmas obtenus à partir de cibles solides.

Enfin, nous pouvons comparer les différences calculées entre le régime ASE et le régime injecté. Dans le régime ASE, le rayonnement initial est l'émission spontanée et son profil spectral peut être considéré comme un profil de Voigt (convolution d'un profil gaussien (élargissement doppler) et lorentzien (élargissement homogène)). La grande incertitude sur la valeur à donner à la densité de puissance de l'émission spontanée nous a poussé à réaliser le calcul pour différentes valeurs de  $\sigma(\nu_0)$  en couvrant trois ordres de grandeur. Les résultats numériques montrent que, dans le régime de saturation, la largeur spectrale de l'ASE dépend peu de  $\sigma(\nu_0)$  et est, dans tous les cas, inférieure à la largeur spectrale du laser XUV injecté. En conclusion, le modèle suggère que la largeur spectrale

mesurée est légèrement supérieure à la largeur spectrale du laser XUV ASE. Par contre, le modèle montre que l'injection d'harmoniques extrait un peu plus d'énergie en exploitant l'ensemble de la population des ions lasants et permet d'atteindre une largeur spectrale légèrement plus importante. Ce dernier point est important si nous voulons atteindre des durées d'impulsions laser XUV plus courtes.

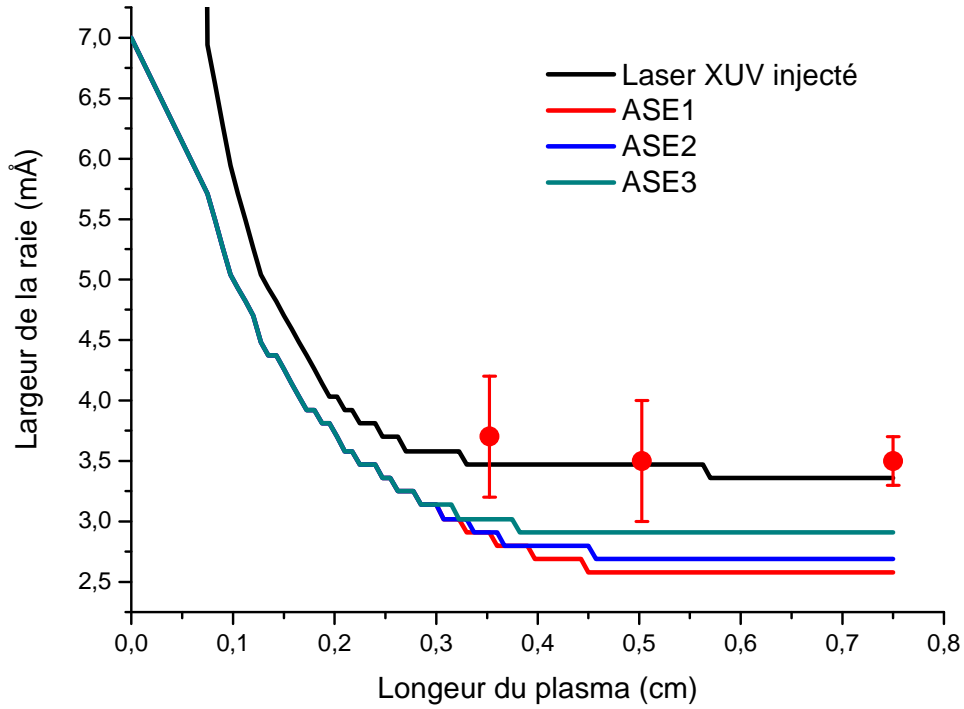


Figure 4.6 : Représentation de la largeur spectrale à mi hauteur en fonction de la longueur du plasma amplificateur du laser XUV injecté (trait noir) et du laser X ASE calculé pour trois valeurs de  $\sigma(\nu_0)$ . Les points rouges correspondent aux valeurs expérimentales.

#### 4.2.1.2 Effet de la longueur du milieu amplificateur

Ici nous nous sommes intéressés à l'influence de la longueur de la cellule amplificatrice sur la mesure de la longueur de cohérence longitudinale. Nous allons comparer deux longueurs de plasma : 3,5 et 5 mm. Pour cette série de mesures nous avons changé la configuration de l'interféromètre pour recentrer le faisceau du laser XUV injecté sur la caméra. Pour cela nous avons disposé la caméra en incidence normale. Cependant en augmentant cet angle nous avons également réduit l'interfrange. Comme le montre le profil des franges sur la Figure 4.7, l'interfrange est de  $52\text{ }\mu\text{m}$  c'est-à-dire 4 pixels sur la caméra. Comme pour la première série, nous avons sélectionné une zone (rectangle blanc sur la figure) pour mesurer la visibilité de ces franges. La mesure a été réalisée dans la zone où la visibilité des franges était la plus élevée. Egalement nous pouvons observer une chute de la visibilité au centre des interférogrammes due à la diffraction sur les bords du dièdre. La mesure de la visibilité a été réalisée sur les deux franges qui se trouvent de part et d'autre de la frange de Fresnel.

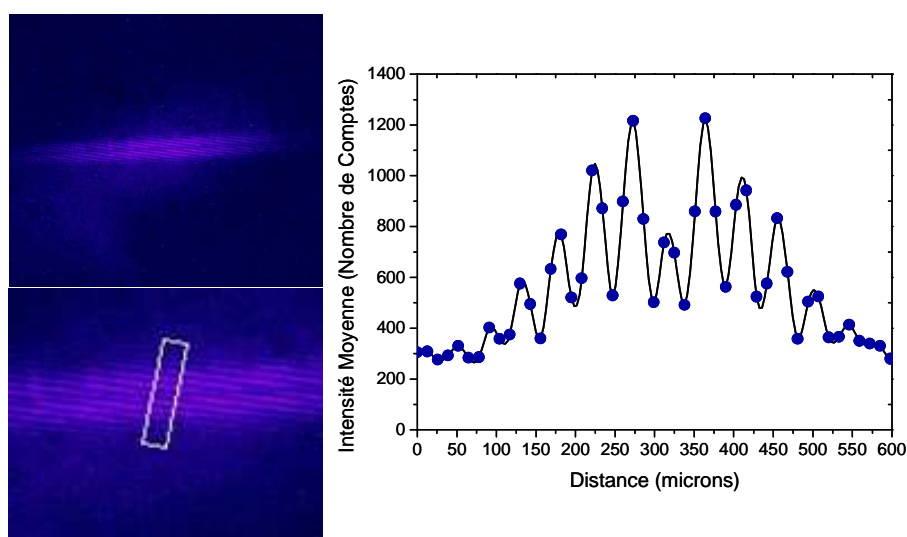


Figure 4.7 : Exemple d'interférogramme enregistré pour une différence de marche nulle entre les deux bras de l'interféromètre.

La Figure 4.8 montre l'évolution de la visibilité des franges mesurée après traitement des interférogrammes pour deux longueurs de cellule : 3,5 et 5 mm. Ces deux résultats ont été obtenus pour une pression de 30 mbar. Nous observons que l'évolution de

la visibilité avec la différence de marche est beaucoup moins « lisse » que celle obtenue pour une longueur de cellule de 7,5 mm. En effet, entre 0 et 0,6 ps nous observons une grande variation de la visibilité. Bien que le taux d'échantillonnage en différence de marche ne soit pas suffisant pour traiter convenablement ces variations rapides de la visibilité, nous pouvons malgré tout constater que l'amplitude de ces variations est beaucoup plus marquée pour la cellule de 3,5 mm que pour celle de 5 mm.

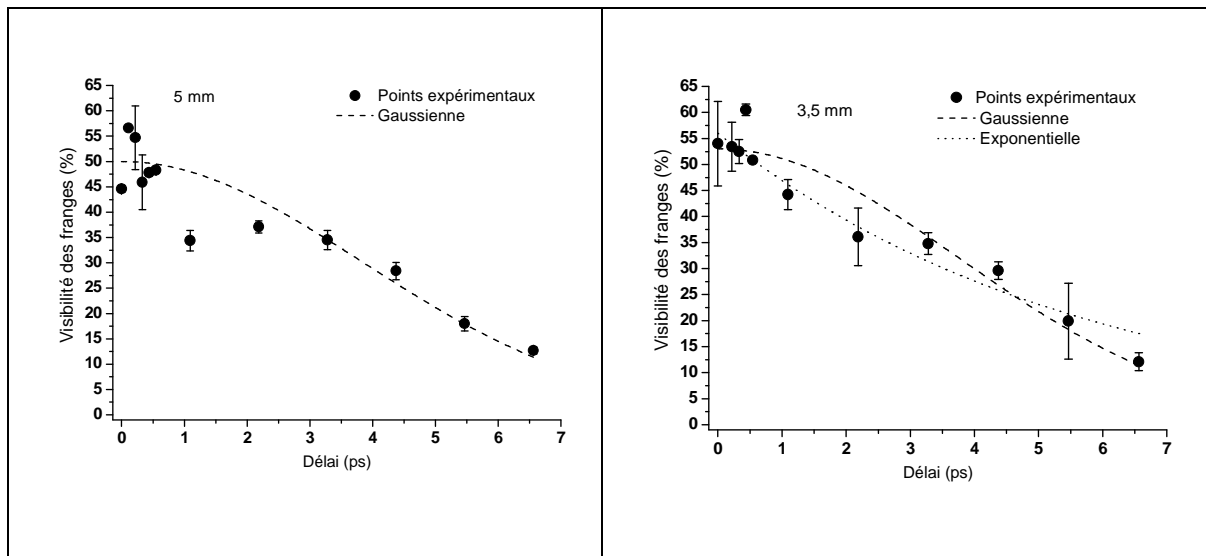


Figure 4.8: Visibilité des franges d'interférences en fonction du délai entre les deux bras de l'interféromètre pour une cellule de 5 mm (à gauche) et 3,5 mm (à droite). Les courbes en pointillé représentent les régressions de fonctions analytiques simples.

Le Tableau 4-3 nous donne les temps de cohérence déduits de chaque régression en fonction de la longueur de la cellule. Nous observons que le temps de cohérence varie très peu pour des longueurs d'amplificateur de 3,5 et 7 mm de cellule. Sur le Tableau 4-4, j'ai reporté les mesures de largeurs spectrales pour différentes longueurs de milieu amplificateur. Nous observons que la largeur spectrale ne change pratiquement pas entre 3,5 et 7,5 mm, ce qui est accord avec la simulation montrée sur la Figure 4.6.

Longueur de cellule (mm)	Fonction de régression	$\tau_c (ps)$
7,5	Gaussienne	$5,4 \pm 0,3$
5,5	Gaussienne	$5,5 \pm 0,7$
3,5	Gaussienne	$5,2 \pm 0,6$
	Exponentielle	$5,1 \pm 0,6$

Tableau 4-3 : Temps de cohérence mesurés à partir des fonctions de corrélation en fonction de la longueur de la cellule.

Longueur de cellule (mm)	Fonction de régression	$\Delta\nu(Hz)$	$\Delta\lambda\left(m\text{\AA}\right)$	$\frac{\Delta\lambda}{\lambda}$
7,5	Gaussienne	$9,9 \pm 0,6 \cdot 10^{10}$	$3,5 \pm 0,2$	$1,08 \pm 0,06 \cdot 10^{-5}$
5	Gaussienne	$1,0 \pm 0,2 \cdot 10^{11}$	$3,5 \pm 0,5$	$1,1 \pm 0,2 \cdot 10^{-5}$
3,5	Gaussienne	$1,0 \pm 0,2 \cdot 10^{11}$	$3,7 \pm 0,5$	$1,2 \pm 0,2 \cdot 10^{-5}$
	Exponentielle	$6,3 \pm 0,2 \cdot 10^{10}$	$2,2 \pm 0,2$	$0,7 \pm 0,2 \cdot 10^{-6}$

Tableau 4-4 : Largeur spectrale de la raie à mi-hauteur du laser XUV injecté calculée à partir de fonctions analytiques qui sont les plus proches des données expérimentales.

## Conclusion :

Dans ce chapitre nous avons réalisé, à l'aide d'un interféromètre à différence de marche variable, la première mesure de la cohérence temporelle d'un laser XUV injecté. L'étude du contraste des franges avec la différence de marche entre les deux bras de l'interféromètre a permis de reconstruire la fonction de cohérence temporelle du rayonnement de notre source XUV. La détermination expérimentale de la fonction de cohérence temporelle a permis d'étudier le profil spectral du rayonnement XUV. Cette étude a montré que le profil de raie laser XUV injecté est proche d'une gaussienne du fait de la forte contribution de l'élargissement inhomogène dû à l'effet Doppler. Nous avons

déterminé une largeur spectrale très fine ( $\Delta\lambda = 3,5 \pm 0,2 \text{ m}\text{\AA}$ ). De plus, nous avons montré que la largeur spectrale était la même sur des longueurs de plasma comprises entre 3,5 mm et 7,5 mm.

Les résultats d'un modèle décrivant l'amplification de la raie de l'harmonique ont été comparés aux résultats expérimentaux. La valeur de la largeur simulée ( $\Delta\lambda = 3,55 \text{ m}\text{\AA}$ ) est en très bon accord avec celle mesurée. Il en a été de même pour l'étude en fonction de la longueur de la cellule. De plus, le modèle suggère que la largeur spectrale mesurée est légèrement supérieure à la largeur spectrale du laser XUV ASE.

Nos mesures ont montré que notre laser injecté à 32,8 nm fonctionne en limite de Fourier (ou possède une cohérence temporelle totale) avec une durée d'émission autour de 5 ps. En effet, la valeur de la durée du laser XUV injecté est comprise entre la valeur de la durée du gain (5 ps), qui correspond à la durée maximale, et la durée donnée par la limite de Fourier (4,7 ps), qui correspond à la durée minimale. Une mesure directe de la durée du laser XUV, à l'aide d'une caméra à balayage de fentes par exemple, permettra de valider ces résultats.

Pour compléter cette étude, il faudrait réaliser des mesures de la cohérence temporelle en fonction de la pression et réaliser des mesures directes de la durée d'émission. Cependant, pour diminuer la durée d'impulsion des lasers XUV de façon significative, il faudrait utiliser des plasmas avec des températures ioniques plus élevées et de forts élargissements inhomogènes comme dans les plasmas obtenus à partir de cibles solides. Pour illustrer ce commentaire, une simulation montrant l'évolution de la largeur spectrale à mi-hauteur en fonction de la longueur du plasma amplificateur pour différentes températures ioniques est présentée sur la Figure 4.9. Nous avons ensuite calculé et reporté dans le Tableau 4-5, les valeurs de la limite de Fourier correspondant à chaque largeur spectrale. Nous observons, par exemple, que pour une température ionique de 54 eV nous avons une durée minimale de 1,34 ps. Hors, pour chauffer les ions il faudra utiliser des lasers dont la durée d'impulsion est bien plus longue, typiquement la centaine de ps. Par conséquent l'élargissement spectral dû à une hausse de la température ionique n'est pas très approprié au schéma OFI mais devrait plutôt convenir aux lasers XUV pompés par impulsion longue type QSS (cf. chapitre 1)



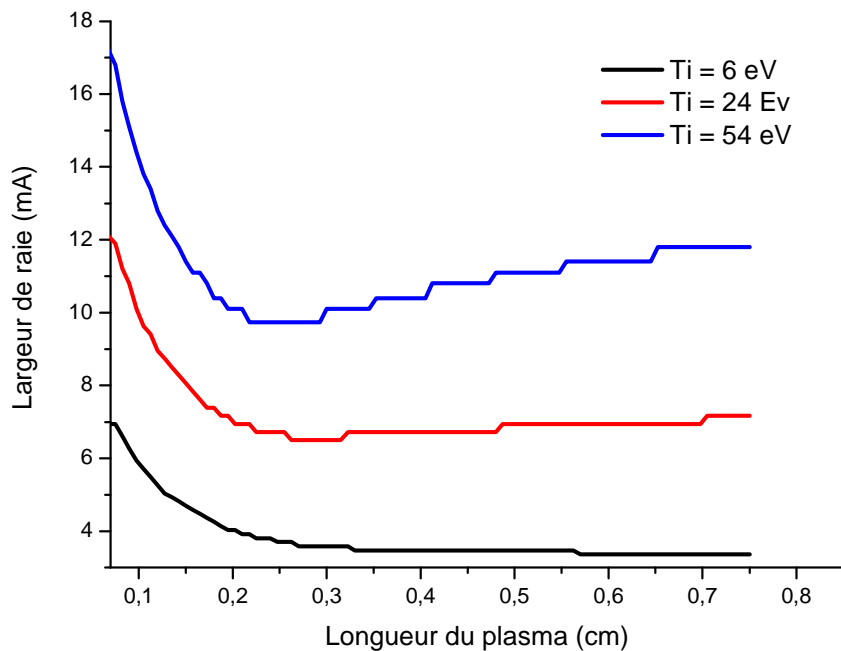


Figure 4.9 : Représentation de la largeur spectrale à mi hauteur en fonction de la longueur du plasma amplificateur du laser XUV injecté pour différentes températures ioniques.

$\Delta\lambda$ doppler (mÅ)	$T_i$ (eV)	$\Delta\lambda$ (mÅ) après amplification	Limite de fourier $\Delta t$ (ps)
7	6	3,36	4,70
14	24	7,17	2,20
21	54	11,8	1,34

Tableau 4-5 : Largeur spectrale de la raie à mi-hauteur du laser XUV injecté et limite de Fourier correspondantes calculées pour différentes températures ioniques.

---

---

# **Chapitre 5 : Caractérisation spatiale du laser XUV injecté**

Une partie importante du travail présenté dans ce manuscrit concerne l'influence de l'amplification d'harmonique sur les qualités spatiales du rayonnement laser à 32,8 nm. Les mesures que nous présentons dans ce chapitre s'attachent à mieux comprendre de quelle manière la géométrie injecteur-amplificateur permet de produire des faisceaux laser XUV ayant de bonnes qualités spatiales. Nous présenterons différentes études expérimentales sur la distribution d'énergie du faisceau à 32,8 nm, sa cohérence spatiale et son front d'onde. Aussi, nos reconstructions numériques mettront en évidence l'influence du couplage spatial entre le faisceau harmonique d'injection et la colonne de plasma de krypton IX sur les propriétés du faisceau amplifié.

## **5.1 Mesure de la distribution d'énergie du laser XUV injecté**

### **5.1.1 Dispositif expérimental**

Pour mesurer la distribution d'énergie du laser à 32,8 nm, nous avons utilisé un système optique composé d'un filtre en aluminium, d'un miroir multicouche à 45° et d'un dispositif de détection qui est une caméra CCD XUV 16 bits. Ce dispositif permet de collecter l'émission XUV avec une ouverture de l'ordre de 5×5 mrad. Un schéma de principe de ce dispositif est représenté sur la Figure 5.1.

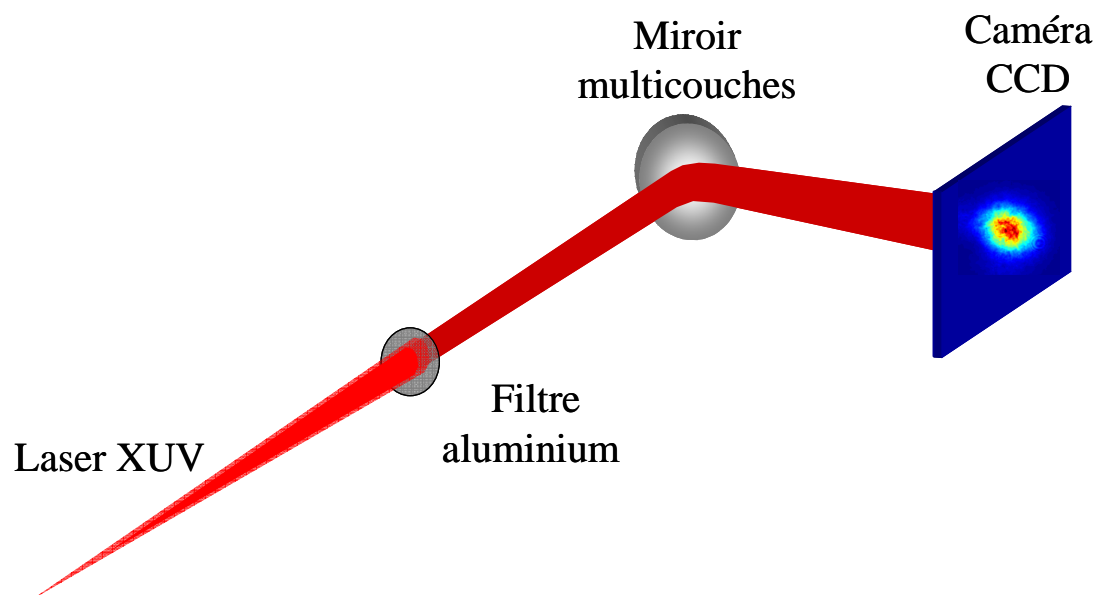


Figure 5.1 : Schéma de principe du dispositif d'enregistrement de la distribution d'énergie en champ lointain. Le filtre en aluminium permet de couper le rayonnement infrarouge.

Le miroir à 32,8 nm est revêtu d'un empilement de couches de B4C/Mo/Si [111]. La Figure 5.2 (a) présente la réflectivité de ce miroir avec un angle d'incidence de 45°, en fonction de la longueur d'onde pour la polarisation S. La réflectivité maximale mesurée après sa fabrication est de l'ordre de 33 % à 32,8 nm. Pour bloquer le rayonnement visible provenant du plasma et le faisceau laser de pompe, nous avons placé un filtre en aluminium de  $2 \times 0,15 \mu\text{m}$  d'épaisseur avant le miroir multicouche. Nous avons mesuré expérimentalement la transmission du filtre et la valeur trouvée est de l'ordre de 4,5 %. La transmission théorique du filtre aluminium en fonction de la longueur d'onde est représentée sur la Figure 5.2 (b). Cette transmission est calculée pour 300 nm d'épaisseur d'aluminium et 35 nm d'oxyde d'aluminium ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ). Ce calcul donne une transmission de l'ordre de 5 %, valeur très proche de la valeur mesurée. Nous avons néanmoins changé plusieurs fois de filtres en aluminium sans avoir systématiquement mesuré la transmission. Cependant, les faibles variations d'intensité mesurées montrent que la transmission des différents filtres était du même ordre de grandeur.

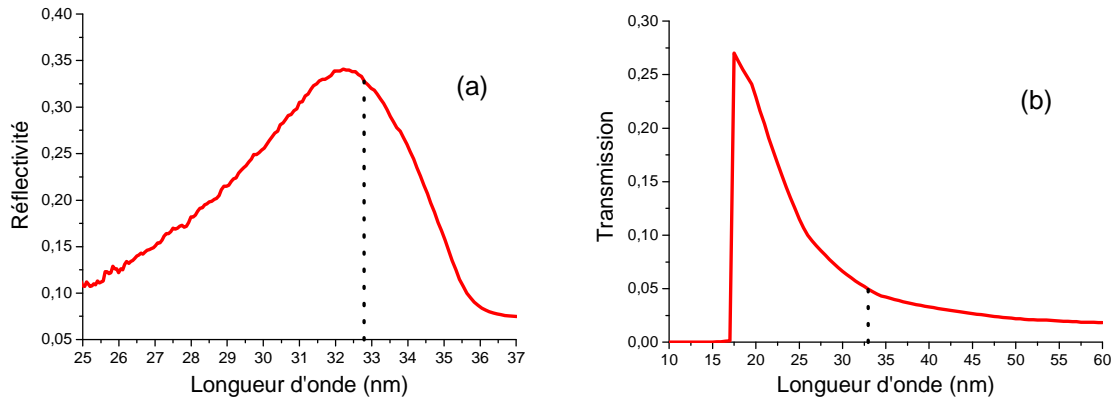


Figure 5.2 : Réflectivité du miroir multicouche de B4C/Mo/Si à 45° d'incidence (a) et transmission théorique du filtre en aluminium (b) pour 300 nm d'aluminium et 35 nm d'oxyde d'aluminium. Le trait noir correspond à la longueur d'onde du laser XUV injecté.

## 5.1.2 Résultats expérimentaux

### 5.1.2.1 Sans injection

Avant de présenter le profil spatial de l'émission laser injectée, il est important de montrer à quoi ressemble l'émission ASE du plasma sans injection. Comme le montre la Figure 5.3, la distribution d'énergie de l'émission ASE présente un profil marqué par la présence de nombreuses surintensités, appelées également speckles. Comme l'ont montré les travaux précédents, ces speckles sont la conséquence directe de la faible cohérence spatiale combinée à la forte cohérence temporelle de l'amplification de l'émission spontanée (ASE) [41]. La divergence du rayonnement n'est pas mesurable dans notre cas car il est difficile de savoir si toute l'émission a été collectée par la caméra CCD. Toutefois, et compte tenu des dimensions attendues de l'amplificateur (de l'ordre de 70  $\mu\text{m}$  de diamètre par  $L = 7$  mm de long), nous nous attendons à un cône d'émission de l'ordre de 5 à 6 mrad d'ouverture, ce qui semble être en bon accord avec ce que nous observons expérimentalement.

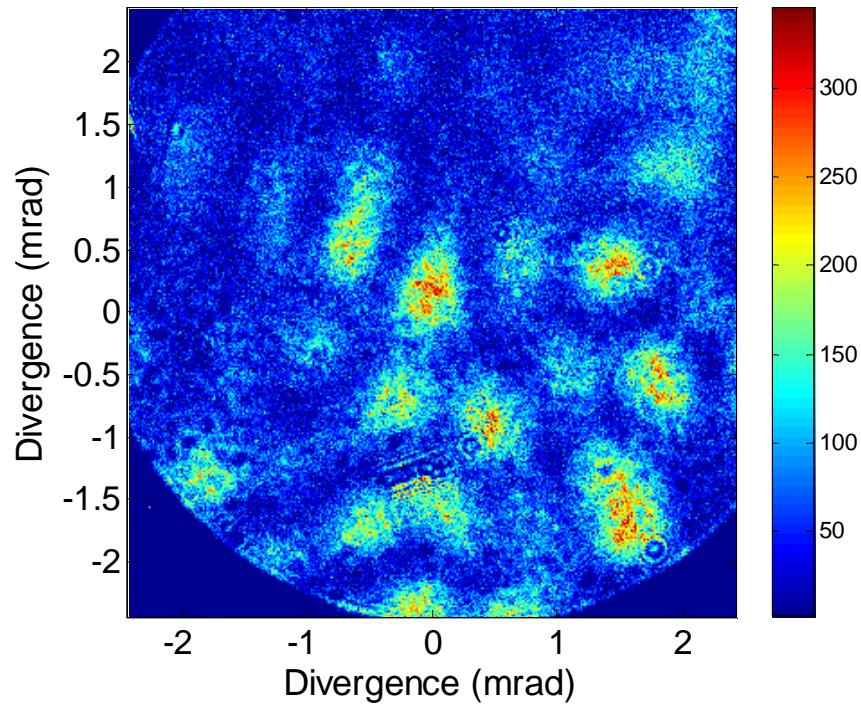


Figure 5.3 : Distribution d'énergie en champ lointain de l'émission ASE. Nous observons très clairement la présence de plusieurs petits sous faisceaux ou speckles.

### 5.1.2.2 Profils injectés

Les mesures d'empreintes de faisceaux que nous allons présenter ici, proviennent de deux séries d'expériences réalisées avec six mois d'intervalle du fait d'une panne du laser. Après réparation, les conditions de pompage optimales (position du foyer, pression du gaz, longueur de cellule) se sont retrouvées légèrement modifiées. Toutefois, il semble que ces changements n'ont pas totalement modifié les dimensions et les qualités amplificatrices du plasma de krypton car le facteur d'amplification de l'harmonique d'ordre 25 s'est avéré semblable pour les deux séries de mesures (entre 150 et 200). Comme nous allons le voir, la plus grande différence entre les deux séries réside dans la mise en forme du faisceau harmonique.

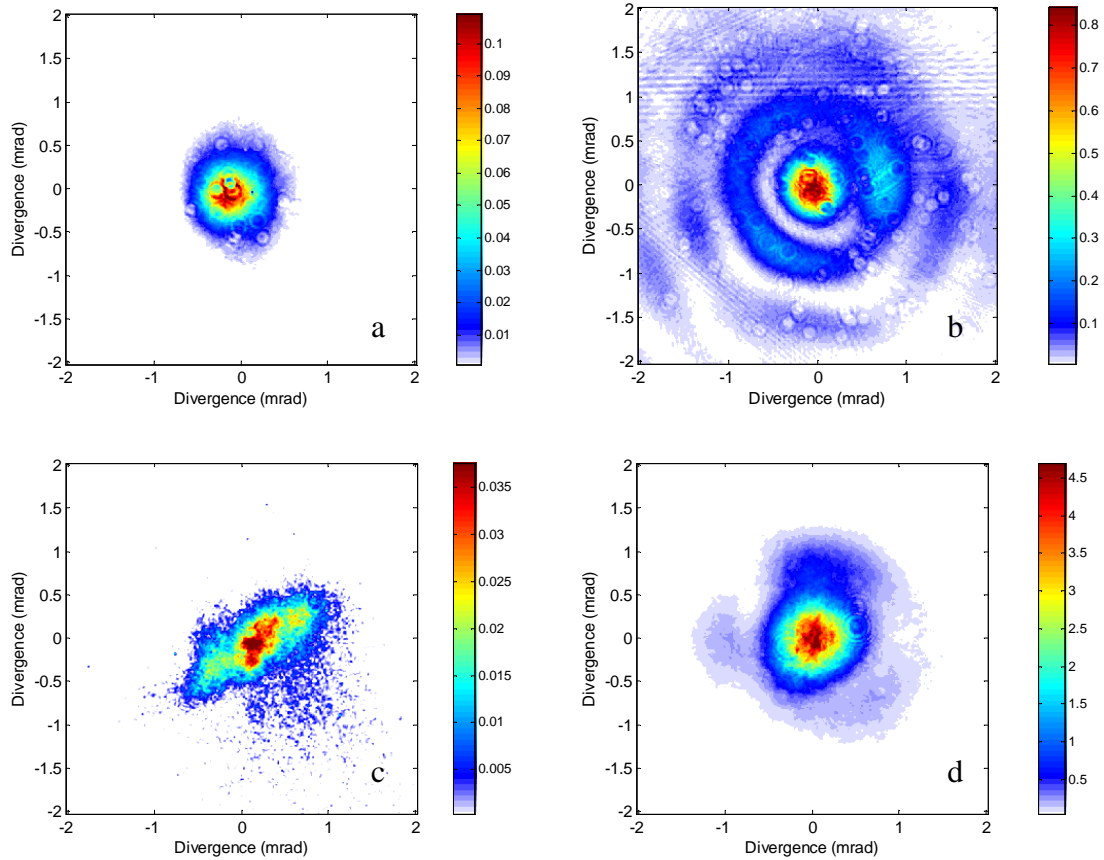


Figure 5.4 : Distributions d'énergie en champ lointain du laser XUV injecté (b et d) et du faisceau harmonique avant injection (a et c) réalisées dans deux configurations expérimentales différentes. Les empreintes de faisceau a et b correspondent à la première configuration et les empreintes c et d à la deuxième.

La Figure 5.4 montre des mesures typiques de distribution d'énergie en champ lointain du faisceau laser injecté et du faisceau harmonique avant injection, effectuées lors des deux périodes. Avant tout, il est important de noter que la distribution d'énergie du laser injecté ne laisse plus apparaître de speckles comme nous les avons vus sur la Figure 5.3. Nous supposons que le plasma n'amplifie plus sa propre émission spontanée, a priori incohérente, mais le rayonnement harmonique, qui lui est cohérent.

Comme le montre la Figure 5.5 (b), pendant la première période le faisceau harmonique possède un profil circulaire et régulier, très proche d'un profil gaussien avec une divergence de l'ordre de  $0,65 \pm 0,05$  mrad ( $1/e^2$ ). Après injection, le profil spatial du laser à 32,8 nm laisse apparaître plusieurs anneaux très marqués autour d'un pic central de forme gaussienne. Cette empreinte de faisceau est très proche d'une fonction de Bessel de



type 1 comme la montre la Figure 5.5 (a). La mesure de la divergence,  $\theta$ , du laser XUV injecté, définie comme étant le demi angle à  $1/e^2$ , est égale à  $0,55 \pm 0,05$  mrad.

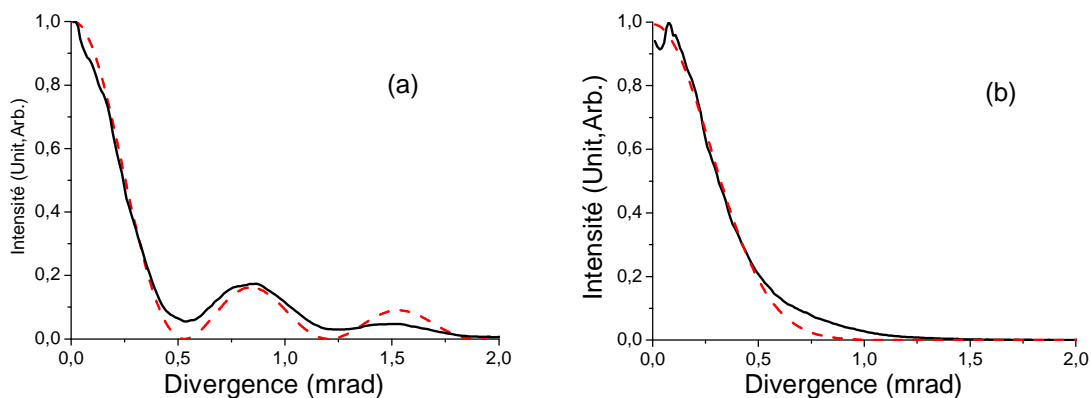


Figure 5.5 : Sur la figure (a), le profil radial du laser XUV injecté (en trait plein noir) est comparé à une fonction de Bessel de type 1 (en pointillé rouge) et sur la figure (b) celui de l'injecteur harmonique (en trait plein noir) comparé avec une fonction gaussienne (rouge pointillé).

Pendant la deuxième série de mesures, le profil du laser injecté est sensiblement modifié. Nous ne voyons plus qu'un seul anneau apparaître (Figure 5.4 (d)). Dans ce cas, et comme le montre la Figure 5.6, la distribution d'énergie du faisceau est très proche d'une fonction d'Airy. Dans cette configuration la mesure de la divergence est un peu plus grande et est égale à 0,67 mrad. En comparaison, le faisceau harmonique présente un profil elliptique avec des divergences, l'une horizontale et l'autre verticale, respectivement autour de l'ordre de 1,3 mrad et 0,5 mrad (Figure 5.4 (c)). Cette forme elliptique est causée par l'astigmatisme introduit par un léger désalignement du miroir torique qui couple la source harmonique au plasma amplificateur.

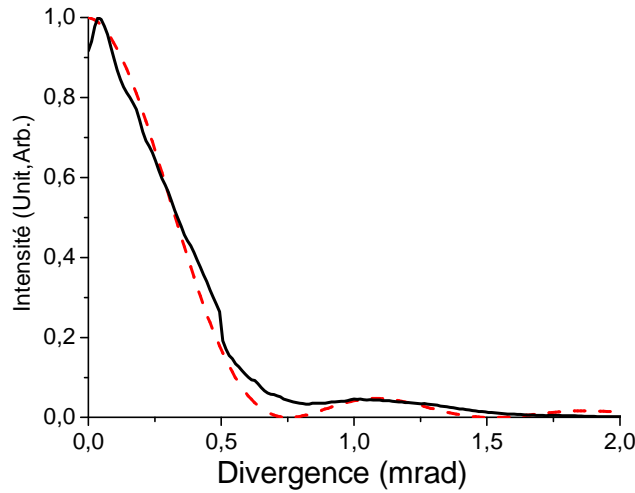


Figure 5.6 : Profil radial du laser XUV injecté (en trait plein noir) comparé avec une fonction d'Airy (en pointillé rouge).

La présence d'anneaux de diffraction autour de la tache centrale du rayonnement amplifié laisse penser que l'harmonique amplifiée traverse un élément diffractant qui a pour effet de modifier de façon significative son profil spatial. Afin d'y voir un peu plus clair, nous avons voulu estimer la taille de cet élément diffractant (ouverture circulaire). Nous avons donc mesuré le rayon  $R$  du disque d'Airy, défini comme le premier anneau sombre donné par la relation suivante :

$$R = \frac{1,22 \lambda d}{D} \quad (60)$$

où  $\lambda$  est la longueur d'onde,  $d$  la distance entre la source et le détecteur et  $D$  le diamètre de l'ouverture circulaire.

Ce calcul simple permet de montrer que cette ouverture circulaire a un diamètre de  $65 \mu\text{m}$ . Etant donné qu'il n'y a pas d'autres ouvertures circulaires de cette dimension entre la cellule et le détecteur, tout se passe comme si l'élément diffractant qui cause l'apparition de ces anneaux autour de la tache centrale est le plasma amplificateur lui-même. Dans le chapitre 2, nous avons calculé que les dimensions radiales du plasma amplificateur étaient de l'ordre de  $70 \mu\text{m}$ , ce qui est conforme aux mesures des profils expérimentaux. Cependant, pour que le plasma puisse modifier le profil des harmoniques après

amplification, il nous faut vérifier que les dimensions du faisceau harmonique sont plus grandes que celles de l'ouverture circulaire calculées précédemment.

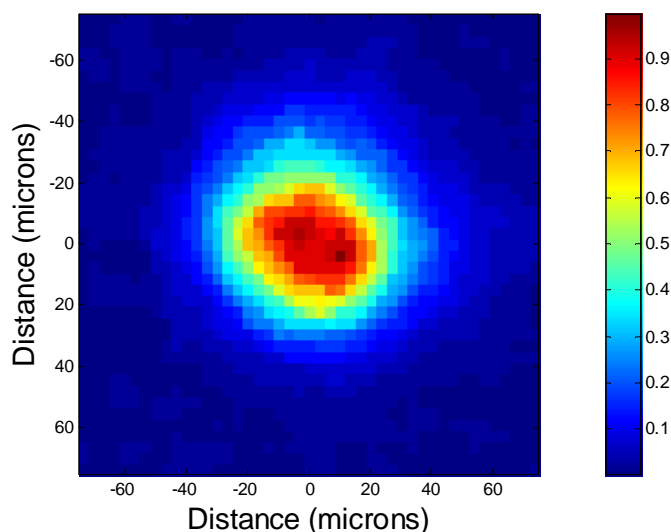


Figure 5.7 : Empreinte de faisceau des harmoniques mesurée au niveau de la cellule amplificatrice à l'aide d'une caméra visible recouverte de phosphore.

Dans ce but nous avons mesuré la distribution d'énergie des harmoniques avant amplification au niveau de la cellule amplificatrice à l'aide d'une caméra visible recouverte d'une fine couche de phosphore. La résolution est ici donnée par la taille du pixel ( $3,5 \mu\text{m}$ ). Le diamètre du spot harmonique est ici de  $90 \mu\text{m}$  (à  $1/e^2$ ) au niveau de la cellule amplificatrice, valeur supérieure au diamètre du plasma amplificateur calculé et présenté sur la Figure 5.7. Cette mesure montre que les modifications du profil spatial des harmoniques après amplification sont très probablement la conséquence d'un filtrage spatial par l'amplificateur plasma. Nous reviendrons sur cette hypothèse au paragraphe 5.4.

### 5.1.3 Influence de la densité de l'amplificateur

La Figure 5.8 montre des empreintes de faisceaux pour différentes pressions dans la cellule remplie de krypton : 10, 15, 20, 30, 50 et 60 mbar. Pour cette mesure nous avons conservé tous les autres paramètres inchangés. Nous observons que le profil évolue très rapidement d'une forme elliptique (faisceau harmonique non amplifié) vers une forme plus

régulière et circulaire. L’empreinte mesurée pour une pression de 10 mbar conserve le profil elliptique du faisceau harmonique alors que le faisceau est déjà deux fois plus intense. Un anneau autour de la tache centrale est clairement visible pour les basses pressions. Cet anneau est très marqué pour 15 mbar et semble disparaître progressivement avant de disparaître totalement pour les pressions supérieures à 30 mbar. Mais si nous y regardons de plus près, nous constatons que l’intensité varie peu entre 15 et 30 mbar alors que la tache centrale du faisceau augmente. Pour des pressions plus importantes, l’anneau apparaît moins clairement. La divergence du faisceau du laser XUV injecté, correspondant ici à la tache centrale, augmente linéairement avec la pression comme le montre la Figure 5.9. Il est probable que l’anneau soit encore présent mais masqué dans les pieds du faisceau pour les plus hautes pressions de krypton.

Deux hypothèses peuvent être avancées pour expliquer la disparition de l’anneau et l’augmentation de la divergence avec la pression. La Figure 5.10 montre le profil du gain intégré sur la toute la longueur de la cellule pour différentes pressions (15, 20, 30 et 40 mbar). Ces profils de gains ont été calculés à partir des cartes de gain de la figure 3.15. Le creux au centre de ces profils correspond à la zone non amplificatrice dû à la surionisation du plasma. La première constatation est que plus la pression est faible (15 et 20 mbar) plus la zone de gain possède des bords francs. Cela permet d’interpréter la présence de l’anneau comme étant bien une figure de diffraction provoquée par l’ouverture franche de la zone de gain. De plus, nous pouvons faire l’hypothèse que ces profils de gain correspondent à ceux du laser XUV injecté à la sortie du plasma amplificateur. Donc, si nous réalisons une transformé de Fourier de ces profils de gain pour obtenir un champ lointain du laser XUV en mode injecté, nous observerions la présence d’anneaux à cause du creux présent au centre des profils de gain. Sur cette même figure nous pouvons voir que les dimensions transverses moyennes de la zone de gain diminuent avec la pression, le diamètre de la zone de gain étant de l’ordre de 80  $\mu\text{m}$  pour des pressions de 15 et 20 mbar et plutôt de 70  $\mu\text{m}$  pour des pressions de 30 et 40 mbar. Nous pouvons donc interpréter cette augmentation de la divergence par la diffraction comme étant provoquée par une zone de gain petite agissant comme un trou de filtrage dont la dimension diminue quand la pression augmente.

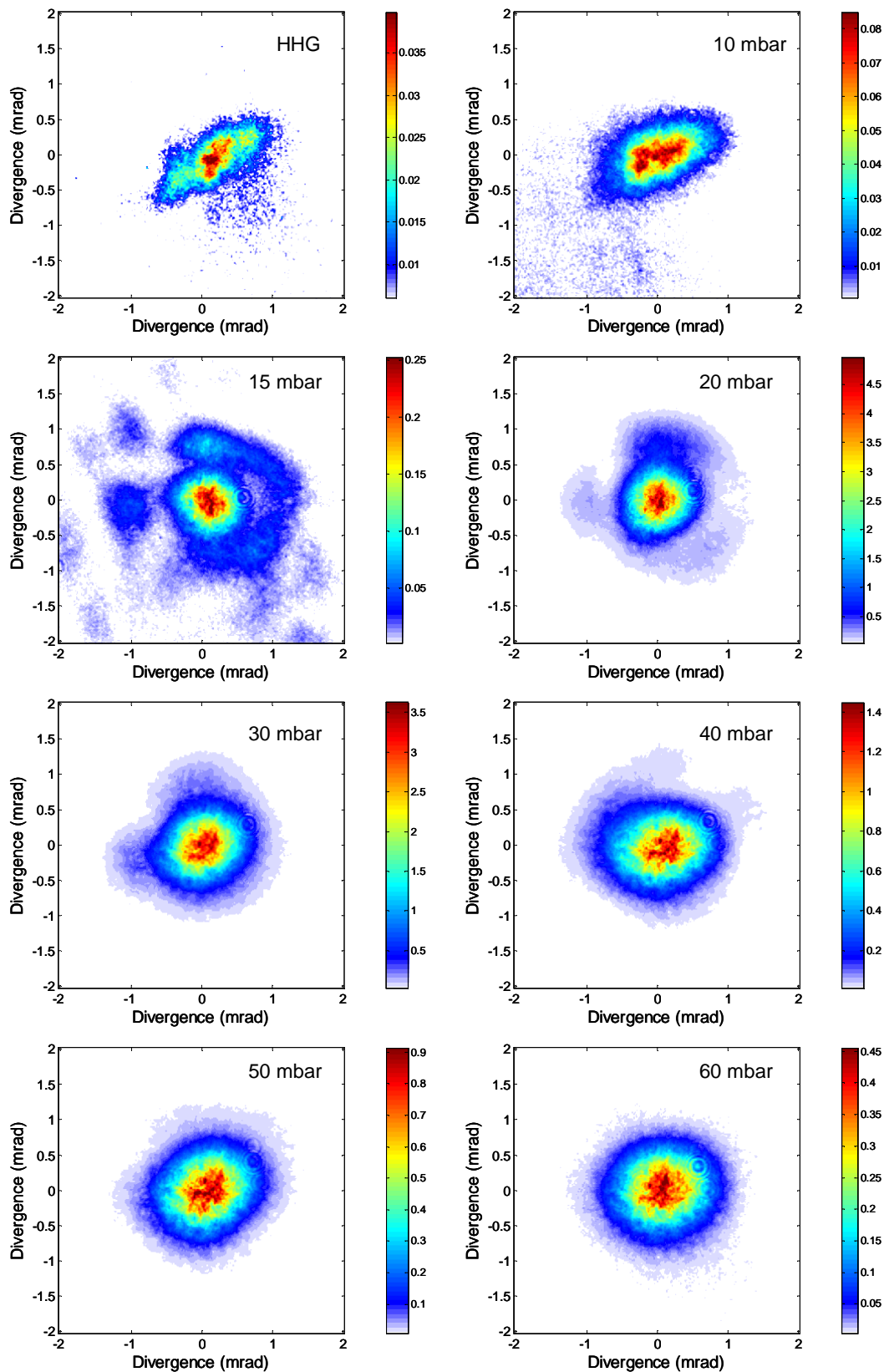


Figure 5.8 : Distribution d'énergie du laser XUV injecté en fonction de la pression. La première image représente le profil du faisceau harmonique avant injection dans le plasma.

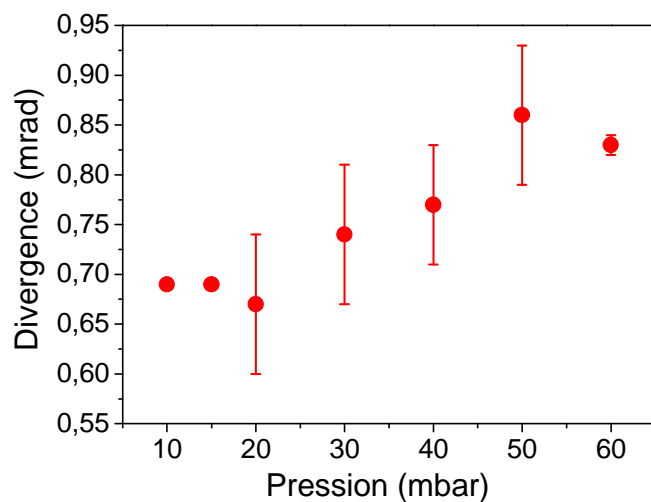


Figure 5.9 : Mesure de la divergence du laser XUV injecté en fonction de la pression dans la cellule amplificatrice.

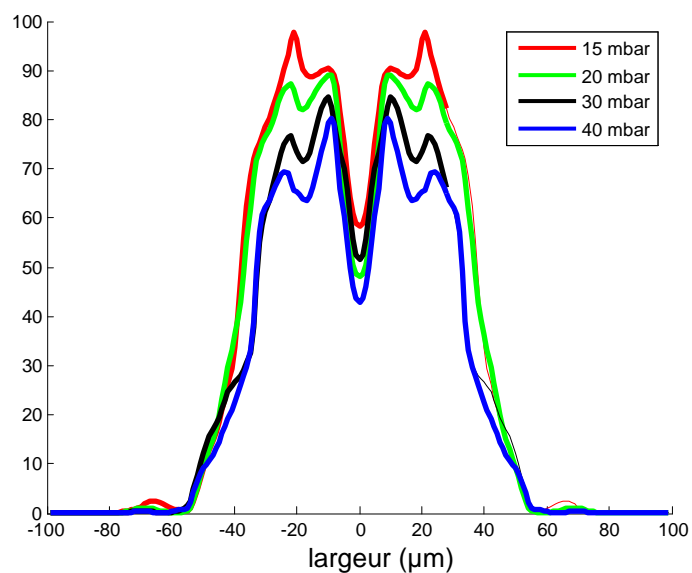


Figure 5.10 : Profil du gain intégré sur toute la longueur de la cellule.

### 5.1.4 Influence de la longueur de la cellule amplificatrice

Les résultats présentés dans le chapitre précédent ont montré que nous étions dans le régime de saturation dès les premiers millimètres d'amplification (autour de 3 mm). Nous avons donc étudié comment la distribution d'énergie du faisceau injecté à 32,8 nm dépend de la longueur du milieu amplificateur et, plus précisément, de la longueur de la cellule de krypton  $L_{\text{cel}}$ . Pour des longueurs de cellule comprises entre 2 et 4 mm, la focalisation du laser infrarouge a été réalisée au centre de la cellule. Par contre pour  $L_{\text{cel}} > 5$  mm, le laser pompe était focalisé 3,5 mm après la face d'entrée, position pour laquelle nous avons observé la plus forte amplification.

La Figure 5.11 présente l'évolution du profil en champ intermédiaire pour une longueur de cellule variant entre 0 et 7,5 mm avec une pression de krypton constante égale à 20 mbar. Celle-ci montre clairement que le profil spatial de l'harmonique amplifiée varie essentiellement sur les trois premiers millimètres d'amplification et plus particulièrement entre  $L_{\text{cel}} = 2$  et  $L_{\text{cel}} = 3$  mm où l'amplification est la plus significative. Pour  $L_{\text{cel}} = 2$  mm le faisceau conserve la forme générale du faisceau harmonique injecté mais laisse cependant apparaître une zone intense et ronde au centre. A partir de 3 mm, nous nous apercevons que les empreintes de faisceau restent très comparables, malgré une amplification significative du signal. Comme le montre la Figure 5.12, la divergence reste aussi quasiment constante entre 3 et 7,5 mm. Pour résumer, une mise en forme spatiale du faisceau harmonique amplifié par la colonne de plasma semble s'effectuer sur les premiers millimètres d'amplification, la longueur d'amplification totale n'apportant aucune modification locale sur les caractéristiques spatiales.

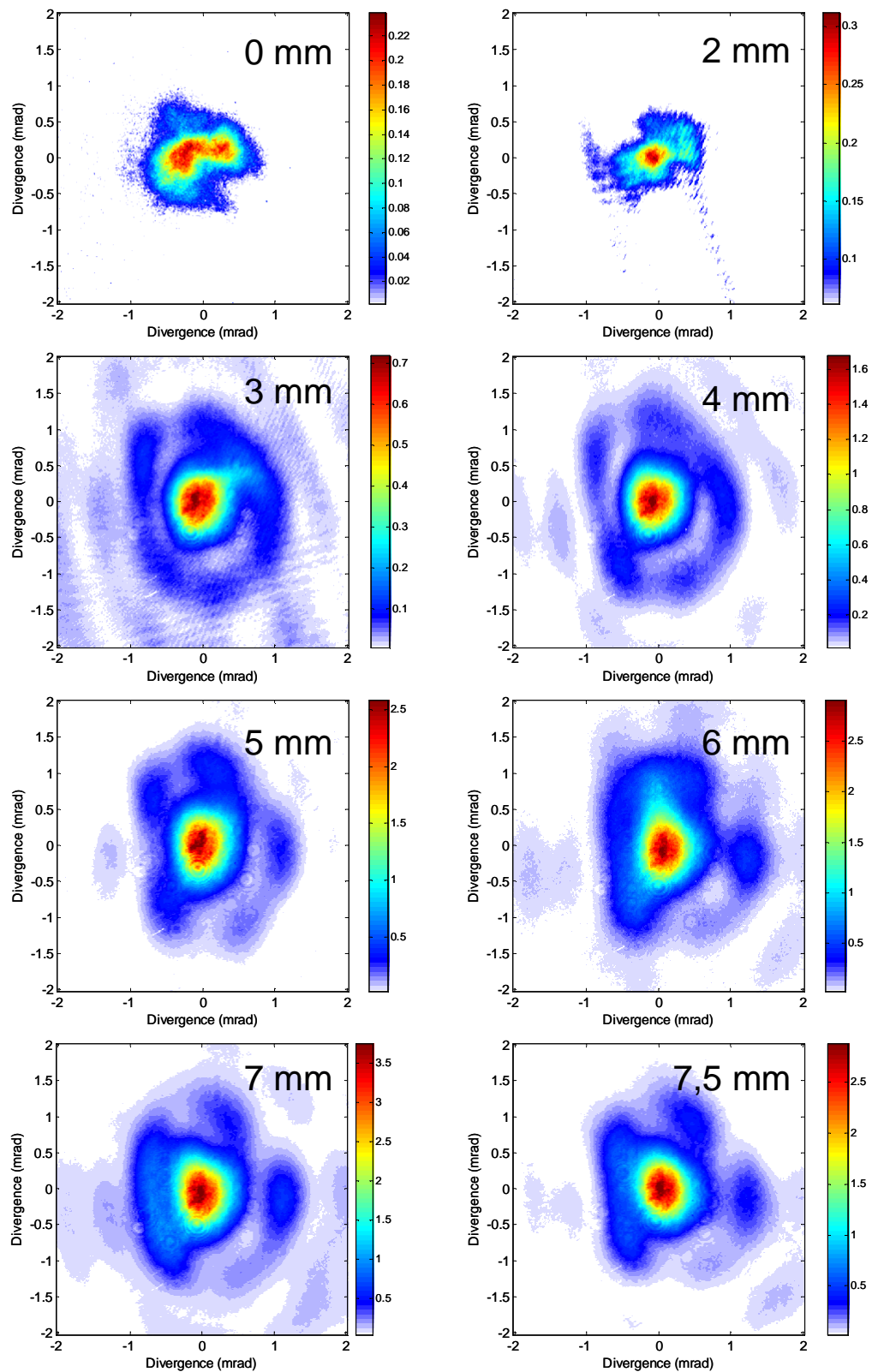


Figure 5.11 : Distribution d'énergie du laser XUV injecté en fonction de la longueur de cellule.



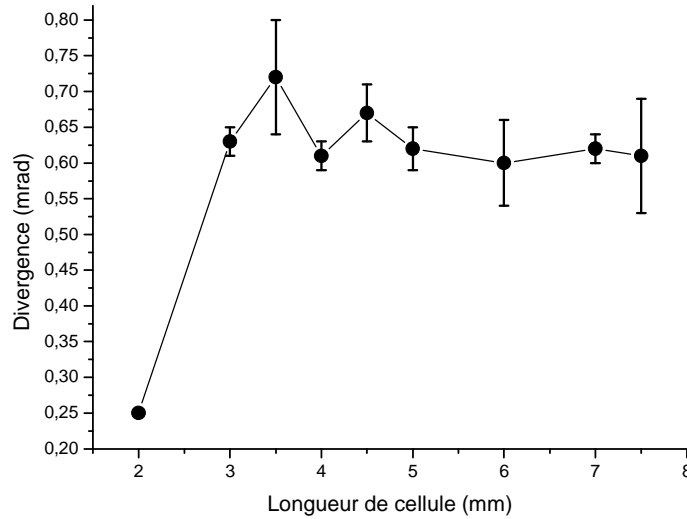


Figure 5.12 : Divergence du laser XUV injecté pour différentes longueurs de la cellule.

### 5.1.5 Estimation par impulsion de l'énergie du laser XUV injecté

Nous avons estimé le flux de photons par impulsion de ce laser injecté à 32,8 nm à partir des profils d'intensité que nous avons montrés précédemment. Le nombre de photons est donné par la formule suivante :

$$N_{photons} = \frac{N_c \times 3,65}{E_{photons} \times E_{ffq} \times T_{filtre} \times R_{miroir}} \quad (61)$$

où  $N_c$  est le nombre de « counts » intégrés sur la caméra CCD,  $E_{photons}$  l'énergie d'un photon en eV,  $T_{filtre}$  la transmission du filtre,  $E_{ffq}$  l'efficacité quantique du détecteur et  $R_{miroir}$  la réflectivité du miroir XUV.

Nous avons intégré le nombre de coups total sur toute la surface de l'empreinte. Pour convertir le nombre de coups en nombre de photons, il faut tenir compte de l'efficacité quantique de la caméra. En effet, une partie seulement des photons est absorbée par le silicium du chip de la caméra. Le constructeur donne une efficacité quantique ( $Eff_q$ ) de 40 % autour de 32 nm. Ensuite, 3,65 eV sont nécessaires pour créer une paire électron-trou. L'énergie  $E$ (eV) d'un photon à 32 nm étant de 37,5 eV, un photon crée plus de 10

paires électron-trou. Enfin, le gain  $G$  de la caméra est fixé à 5, et la transmission  $T$  du filtre est de 4,5 %. La plus grande incertitude réside sur la valeur de la réflectivité du miroir multicouche. Comme je vous l'avais présenté au début de ce chapitre, la réflectivité mesurée après sa fabrication est de 33 %. Mais avec le temps ce type de miroir s'oxyde au contact de l'air et sa réflectivité chute aux alentours de 20 % (valeur habituellement relevée). Pour les expériences de mesure de front d'onde (voir paragraphe 5.4) nous avons utilisé un deuxième miroir multicouche normalement identique au premier. Le faible signal obtenu après cette deuxième réflexion nous a conduit à mesurer sa réflectivité qui se situe finalement entre 2 % et 3 %. Les contraintes expérimentales ne nous ont pas permis d'effectuer la mesure de la réflectivité du premier miroir. Pour cette raison, l'estimation de l'énergie se fera pour des valeurs de réflectivité comprises entre 2,5 et 20 % soit une incertitude absolue d'un ordre de grandeur.

Le calcul de l'énergie pour le laser injecté donne pour le premier type d'empreinte (avec de nombreux anneaux) une valeur comprise entre 132 et 1060 nJ selon la réflectivité du miroir multicouche prise en compte alors que pour le deuxième type de profil, l'énergie est trois fois supérieure située entre 390 et 3115 nJ à la source. Cette dernière mesure a un flux compris entre  $6.10^{10}$  et  $5.10^{11}$  photons/impulsion. En comparaison, pour l'harmonique 25 à 32,8 nm nous avons évalué à peu près la même énergie pour les deux configurations située entre 6 et 40 nJ (selon la valeur de la réflectivité) ou en terme de flux entre  $4.10^8$  et  $6.10^9$  photons/impulsion. Cela montre une différence au niveau de l'amplificateur entre les deux types d'empreintes.

Comme nous avons mesuré la largeur spectrale du laser XUV injecté dans le chapitre précédent, nous pouvons donner une fourchette pour la valeur de la brillance impulsionnelle qui est comprise entre  $4.10^{23}$  et  $3,5.10^{24}$  photons/s/mrad<sup>2</sup>/mm<sup>2</sup>/(0.1%Bandwidth) selon la valeur de la réflectivité du miroir multicouche. La brillance est un paramètre clé pour les expériences d'interaction laser XUV matière à haute intensité pour lesquelles il est nécessaire de focaliser le rayonnement.

### 5.1.6 Stabilité du laser injecté à 32,8 nm

La stabilité tir à tir du laser injecté est un paramètre important pour la mise en place d'expériences d'applications. Il est à noter que les variations d'intensité de ce type de laser peuvent avoir différentes origines indépendantes. Tout d'abord, l'intensité du laser de pompe fluctue environ de 15 % tir à tir. Ceci peut entraîner de larges variations de l'intensité du faisceau harmonique (de l'ordre de 50 %) et des qualités amplificatrices du plasma d'autant que ces deux processus sont hautement non linéaires et que les fluctuations subies à chaque tir sont identiques sur les deux éléments. Ces fluctuations sont naturellement moins importantes quand nous amplifions en régime de saturation, comme dans le cas de nos expériences. Un autre facteur d'instabilité est dû à la variation de couplage harmonique-plasma qui est essentiellement provoqué par des variations de pointé de la chaîne laser elle-même. Ce point difficile à compenser s'est avéré être le plus grand facteur d'instabilité au cours de nos mesures. Dans le futur, nous pourrions atténuer ces variations de pointé du laser de pompe en installant un connecteur tip-tilt rapide avec capteur de position.

La Figure 5.13 montre une série de profils spatiaux enregistrés successivement dans les mêmes conditions d'interaction. Nous reconnaissons le profil de type « fonction de Bessel de type 1 » déjà discuté dans le paragraphe 4.2.2.2 et nous remarquons, d'un point de vue qualitatif, que le profil du faisceau varie peu même pour les tirs les moins intenses (à l'exception de quelques tirs ratés). Pour quantifier ces fluctuations tir à tir, nous avons reporté sur la Figure 5.14 le facteur d'amplification correspondant. Nous constatons que celui-ci est en moyenne de 73 avec des variations allant jusqu'à 100 %.

Egalement, nous avons relevé sur la Figure 5.15 la position du centroïde de chaque empreinte de faisceau afin de savoir si les faisceaux les plus amplifiés étaient émis sur un axe privilégié. Chaque croix sur cette figure correspond à la position du centroïde sur le capteur CCD. La taille de la croix rendant compte de l'intensité du laser injecté. La position de référence « 0 » correspond à la position de l'empreinte harmonique sans amplification. La Figure 5.15 montre que, globalement, le faisceau harmonique amplifié est émis dans une direction légèrement décalée par rapport l'axe de départ et donc que l'amplification dévie le faisceau. Ce résultat est un peu surprenant car nous avons jusqu'ici considéré que la réfraction des harmoniques par le plasma amplificateur était négligeable. Mais il est possible que cette légère déviation soit causée par le guidage par le

gain. Globalement, la majorité des empreintes de faisceau injecté est émise dans la même direction avec une variation moyenne de l'ordre de 0,1 mrad. Nous constatons que l'écart de position moyen du faisceau injecté est de l'ordre de 0,3 mrad par rapport à la position d'origine, l'écart type étant autour de 0,2 mrad. Pour donner un ordre de grandeur, 0,2 mrad correspond à un tiers de la dimension du faisceau, montrant que le pointé de notre laser XUV injecté est assez stable.

Les faisceaux les plus excentrés sont un peu moins amplifiés, ce qui montre que, dans ce cas, le couplage harmonique-plasma est faible. Ceci est dû à un écart de pointé du faisceau harmonique lui-même qui coïncide mal avec la zone de gain.

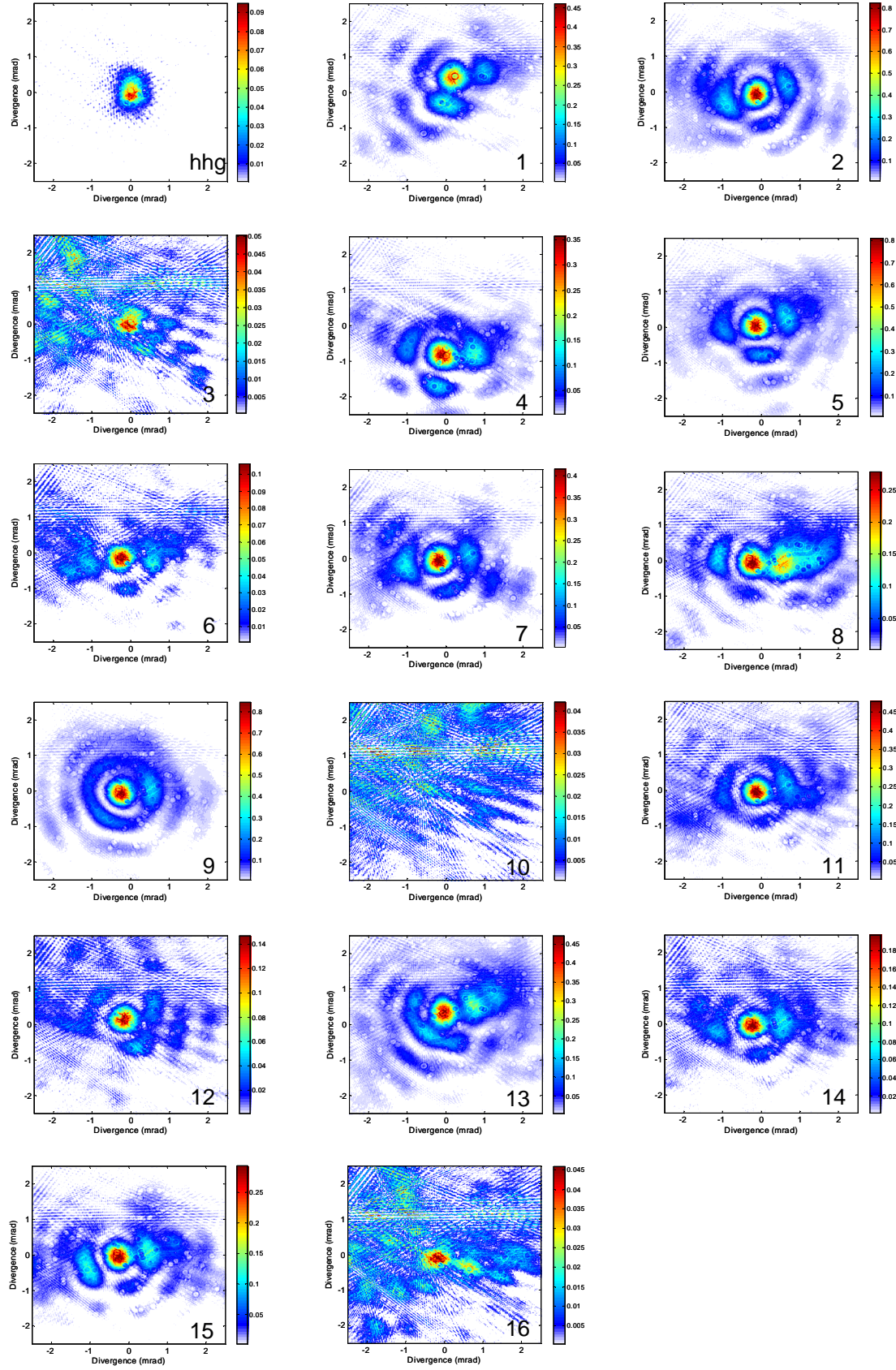


Figure 5.13 : Empreintes de faisceau pour l'étude de la stabilité du laser XUV injecté.

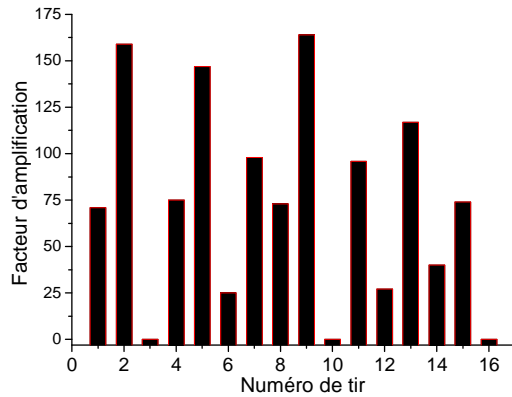


Figure 5.14 : Facteur d'amplification du faisceau laser XUV injecté d'un tir à l'autre.

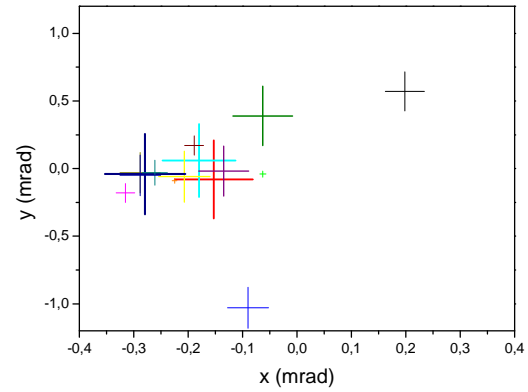


Figure 5.15 : Position du centroïde du faisceau laser XUV injecté mesuré au niveau de la caméra en fonction de son énergie. Plus les croix sont grandes plus le faisceau est intense.

## 5.2 Mesure de la cohérence spatiale du laser XUV injecté

### 5.2.1 Expérience des fentes d'Young : principe et montage expérimental

Nous avons mesuré la cohérence spatiale (voir Annexe A) du faisceau laser injecté à 32,8 nm grâce à un système de doubles fentes d'Young. Nous avons aussi mesuré indépendamment les cohérences du faisceau laser XUV émis par l'amplificateur et du faisceau harmonique non amplifié pour évaluer l'influence de l'amplification sur cet aspect.

### 5.2.1.1 Principe

Les fentes d'Young désignent en physique un dispositif qui permet de faire interférer deux faisceaux de lumière issus d'une même source, en les faisant passer par deux fentes fines parallèles situées dans le même plan orthogonal au faisceau lumineux. Cette expérience fut réalisée pour la première fois par Thomas Young en 1801 et a permis de mettre en évidence la nature ondulatoire de la lumière.

Dans cette expérience la source engendre par diffraction sur chaque fente deux sources secondaires  $S_1$  et  $S_2$  dont le rayonnement est reçu par un écran. Sur cet écran nous observons un motif de diffraction et d'interférence qui est une zone où s'alternent des franges sombres et illuminées. Plus les franges d'interférence sont contrastées, plus la cohérence entre les points  $S_1$  et  $S_2$  du faisceau est grande. La visibilité ou contraste des franges d'interférence est définie par la relation suivante :

$$C = \frac{I_{Max} - I_{MIN}}{I_{MAX} + I_{MIN}} \quad (62)$$

Pour comprendre l'apparition des franges, considérons un point M situé sur l'écran éclairé par les ondes émises par  $S_1$  et  $S_2$  qui peuvent s'écrire respectivement :

$$\begin{aligned} E_1 &= E_0 \sin(\omega t) \\ E_2 &= E_0 \sin(\omega t - \Delta\varphi) \end{aligned} \quad (63)$$

où  $E_0$  est l'amplitude,  $\omega$  la pulsation et  $\Delta\varphi$  le déphasage et  $t$  le temps.

Le déphasage,  $\Delta\varphi$ , caractérise le fait qu'une onde a un certain retard par rapport à l'autre. En effet, le chemin n'est pas de la même longueur pour un rayon qui provient d'une source ou de l'autre pour arriver au point M. Si  $\Delta\varphi$  est un multiple de  $2\pi$ , les ondes s'ajoutent et nous obtenons une frange lumineuse sur l'écran, ce qui est appelé une interférence constructive. En revanche si  $\Delta\varphi$  est un multiple impair de  $\pi$  alors les ondes s'annulent et nous obtenons une frange sombre sur l'écran, c'est alors une interférence destructive. Cela explique pourquoi nous observons, sur l'écran, des franges successivement claires et sombres.

Pour le calcul de  $\Delta\varphi$  nous pouvons faire l'approximation suivante : la distance  $D$  entre l'écran et les fentes est grande devant la distance entre les fentes  $d$ . Les distances de M à  $S_1$  et de M à  $S_2$ , notées respectivement  $r_1$  et  $r_2$ , vérifient alors :

$$r_1 - r_2 = \frac{d}{D} x \quad (64)$$

où  $x$  est la distance de  $M$  au centre de l'écran.

Cette différence de trajet, souvent appelée différence de marche, correspond à un déphasage entre les deux rayons et s'écrit :

$$\Delta\varphi = \frac{2\pi}{\lambda} \frac{d}{D} x \quad (65)$$

Nous pouvons alors montrer que l'intensité reçue est répartie de manière périodique au niveau de l'écran et est proportionnelle à:

$$\cos^2\left(\frac{\Delta\varphi}{2}\right) = \cos^2\left(\frac{\pi}{\lambda} \frac{d}{D} x\right) \quad (66)$$

La largeur réduite de chaque fente provoque un phénomène de diffraction. Cet effet se répercute sur la figure observée, l'intensité des franges décroît au fur et à mesure que l'on s'éloigne du centre. Pour en tenir compte, il faut rajouter un sinus cardinal (TF d'une fonction porte) à l'intensité reçue par l'écran.

Au final, l'intensité au point  $M$  peut s'écrire :

$$I_M = A_0 \sin c^2\left(\frac{\pi \ell}{\lambda D} x\right) \cos^2\left(\frac{\pi d}{\lambda D} x\right) \quad (67)$$

où  $A_0$  est l'amplitude et  $\ell$  la largeur des fentes.

L'équation 67 permet de simuler un profil d'intensité d'une source à 32,8 nm totalement cohérente en utilisant les paramètres expérimentaux (voir paragraphe suivant). La Figure 5.16 montre que cette simulation (courbe en noire) est en très bon accord avec les mesures réalisées avec le laser XUV injecté (points rouges). Le léger décalage entre les deux courbes provient certainement de l'incertitude que nous avons sur la distance entre les fentes et l'écran (caméra CCD dans notre cas).



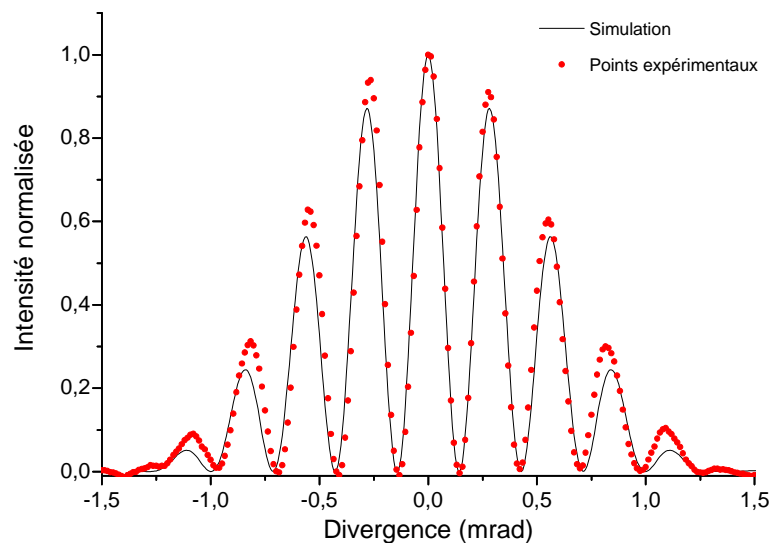


Figure 5.16 : Simulation d'un profil d'intensité réalisé dans le cas d'une longueur d'onde de 32,8 nm, une distance entre les fentes de 115  $\mu\text{m}$  et une largeur de fente de 23,5  $\mu\text{m}$  (courbe en noire). Les points en rouge correspondent aux résultats expérimentaux du laser XUV injecté réalisés dans les mêmes conditions.

### 5.2.1.2 Montage expérimental

Comme le montre la Figure 5.17, le montage expérimental est globalement identique à celui utilisé pour les mesures de distribution spatiale. La seule différence réside dans la mise en place d'une série de doubles fentes gravées sur une même plaque, placée à 70 cm de l'amplificateur XUV. La distance fente-détecteur est ici de 152 cm. La largeur des fentes a été mesurée à  $23,5 \pm 0,1 \mu\text{m}$  à l'aide d'un microscope optique comme le montre la Figure 5.18. Nous disposons donc d'un système de fentes dont les différents espacements étaient respectivement de 115  $\mu\text{m}$ , 227  $\mu\text{m}$ , 323  $\mu\text{m}$ , 423  $\mu\text{m}$  et 523  $\mu\text{m}$ . En comparaison, les tailles des différentes sources au niveau de la plaque des fentes d'Young étaient de  $450 \pm 40 \mu\text{m}$  (à mi-hauteur) ou  $770 \pm 70 \mu\text{m}$  (à  $1/e^2$ ) pour le faisceau laser XUV injecté,  $536 \pm 40 \mu\text{m}$  (à mi-hauteur) ou  $910 \pm 70 \mu\text{m}$  (à  $1/e^2$ ) pour le faisceau injecteur harmonique et de l'ordre de 2,2 mm (à mi-hauteur) pour le faisceau ASE.

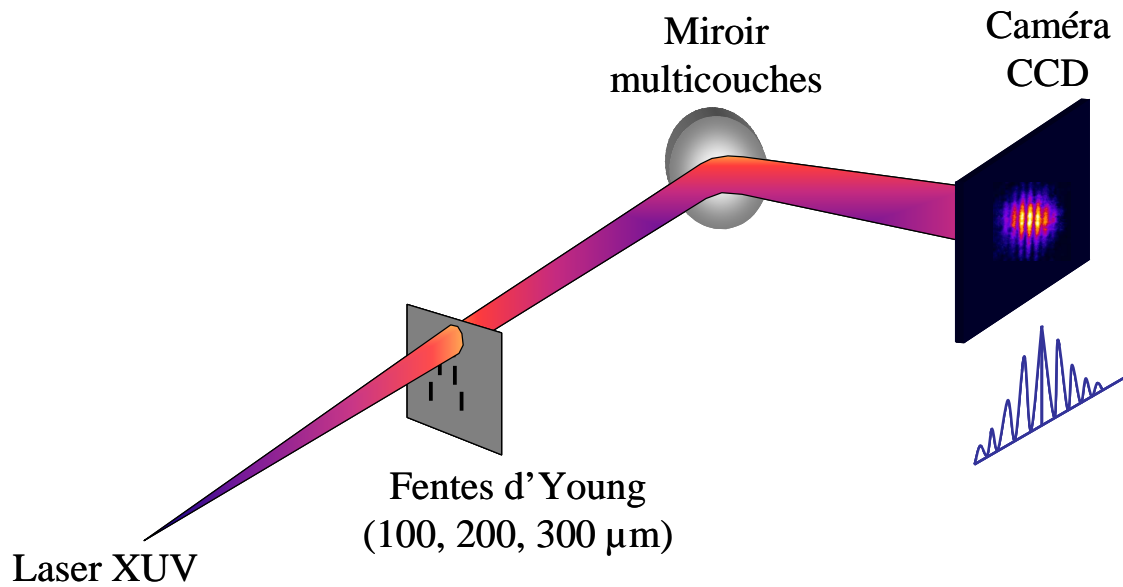


Figure 5.17 : Schéma de principe de la mesure de la cohérence spatiale des sources XUV.

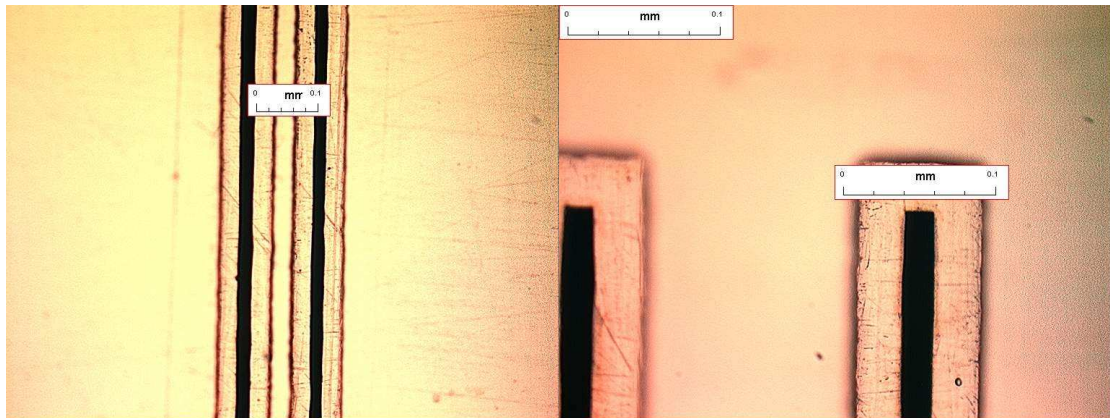


Figure 5.18 : Images réalisées à l'aide d'un microscope optique pour une interférence de 115  $\mu\text{m}$  (à gauche) et 227  $\mu\text{m}$  (à droite). Le microscope nous a permis de mesurer précisément la distance entre les fentes ainsi que leur largeur.

## 5.2.2 Résultats expérimentaux

La Figure 5.19 montre les figures d'interférences obtenues respectivement pour le laser XUV injecté, le faisceau harmonique non amplifié et le faisceau XUV en mode ASE pour différents espacements de fentes allant de 115 à 423  $\mu\text{m}$ . Pour obtenir un niveau de signal exploitable, nous avons accumulé une centaine de tirs pour le faisceau harmonique seul et l'émission ASE alors que 10 tirs ont suffi pour le laser à 32,8 nm injecté. Pour la mesure de la cohérence du faisceau harmonique nous avons éclipsé la cellule amplificatrice. De plus, le faisceau harmonique étant composé d'un peigne de 5 harmoniques nous avons mesuré la visibilité au centre de la figure d'interférence pour éviter le phénomène de brouillage de franges présent dans le cas de sources polychromatiques.

Comme le montre clairement ces images, le laser XUV injecté montre un niveau de contraste de franges, et donc une cohérence spatiale, bien supérieur à celui des harmoniques non amplifiées et de l'émission ASE de la colonne de plasma. Bien que la taille du faisceau de l'émission ASE soit beaucoup plus importante (environ 2,2 mm) que l'espacement des fentes, le contraste ne dépasse pas 45 % pour une distance inter fente de seulement 115  $\mu\text{m}$ . La Figure 5.20 montre l'évolution de la visibilité  $C$  avec la distance entre les fentes extraite des mesures de contraste. Ici, nous définissons la longueur de cohérence spatiale  $R_c$  comme la longueur pour laquelle la visibilité est diminuée d'un facteur  $1/e$ . La longueur de cohérence de l'émission ASE est d'environ 98  $\mu\text{m}$ , ce qui est environ 20 fois plus petit que le diamètre du faisceau. Ce résultat est similaire à celui obtenu pour l'émission ASE du cadmium nickelé à 13,2 nm [112]. Pour le faisceau harmonique, le contraste mesuré est plus faible que ce à quoi nous nous attendions avant la mesure. En effet, les nombreuses mesures de cohérence transverse que nous pouvons trouver dans la littérature montrent souvent une source bien plus cohérente spatialement que ne le montrent nos mesures. Ici, la visibilité des franges chute très rapidement avec l'espacement des fentes : 50 % pour 115  $\mu\text{m}$ , 12% pour 223  $\mu\text{m}$  et 0% à 323  $\mu\text{m}$ . Une des raisons qui peut expliquer la faible cohérence de nos harmoniques est la forte intensité du laser infrarouge ( $10^{15}$  à  $2 \cdot 10^{15}$   $\text{W} \cdot \text{cm}^{-2}$ ) utilisée pour produire le faisceau d'harmoniques [113]. Néanmoins, nous avons estimé ici une longueur de cohérence égale à 102  $\mu\text{m}$ , ce qui

correspond à environ un cinquième du diamètre du faisceau calculé à mi-hauteur au niveau des fentes.

Après amplification du faisceau harmonique par une colonne de plasma de 7,5 mm, la visibilité du rayonnement à 32,8 nm passe de 95 % pour un espacement de 115  $\mu\text{m}$  à 45 % pour un espacement de 323  $\mu\text{m}$ , montrant qu'une amélioration importante de la cohérence transverse du rayonnement a été réalisée. La longueur de cohérence atteint alors 232  $\mu\text{m}$ , ce qui correspond à plus de 50 % du diamètre à mi-hauteur du faisceau.

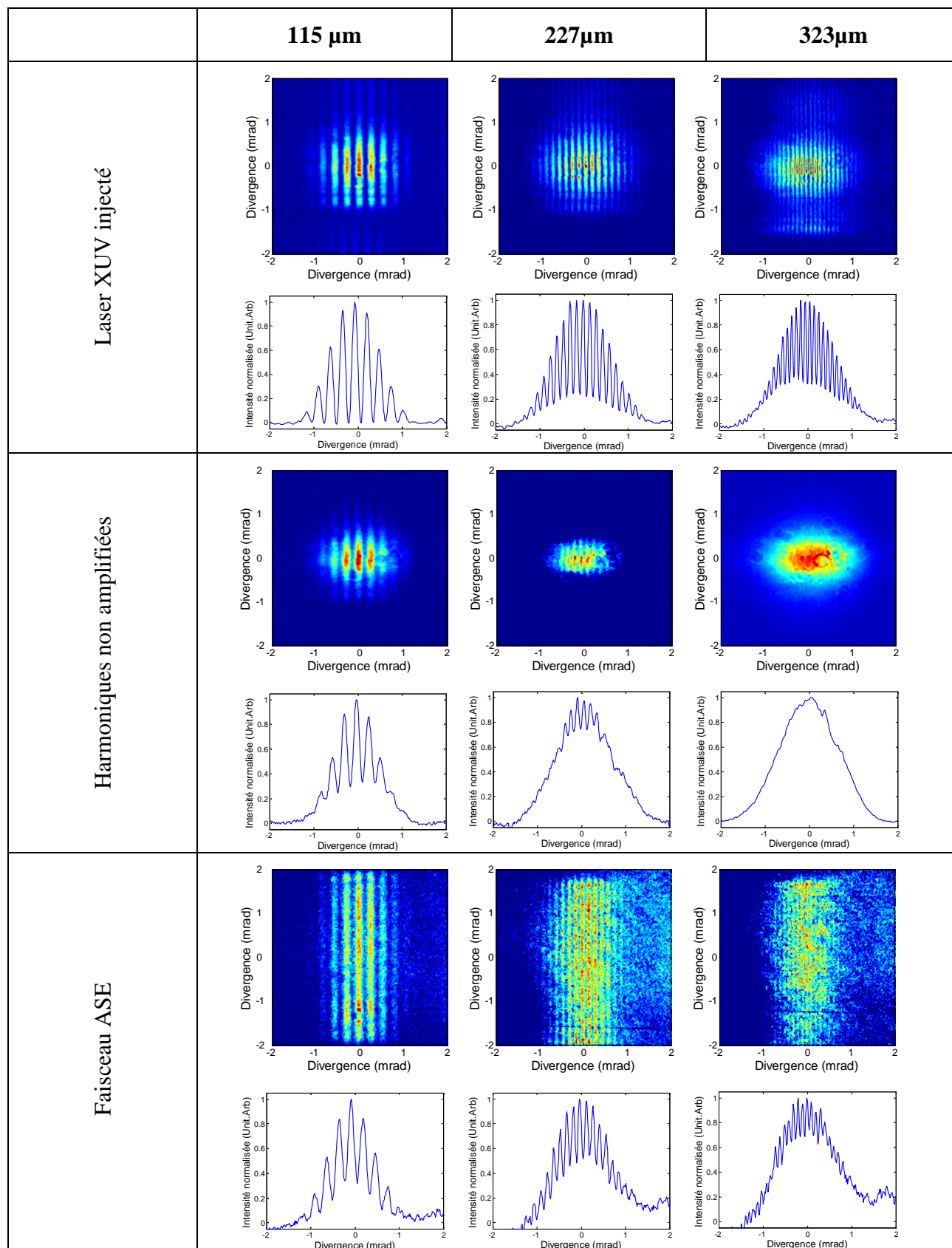


Figure 5.19 : Mesure des figures d'interférences et de leur profil d'intensité pour le laser XUV injecté (en haut), le faisceau harmonique avant amplification (au centre) et le faisceau ASE (en bas) pour des interférentes de 115  $\mu\text{m}$ , 227  $\mu\text{m}$  et 323  $\mu\text{m}$ .

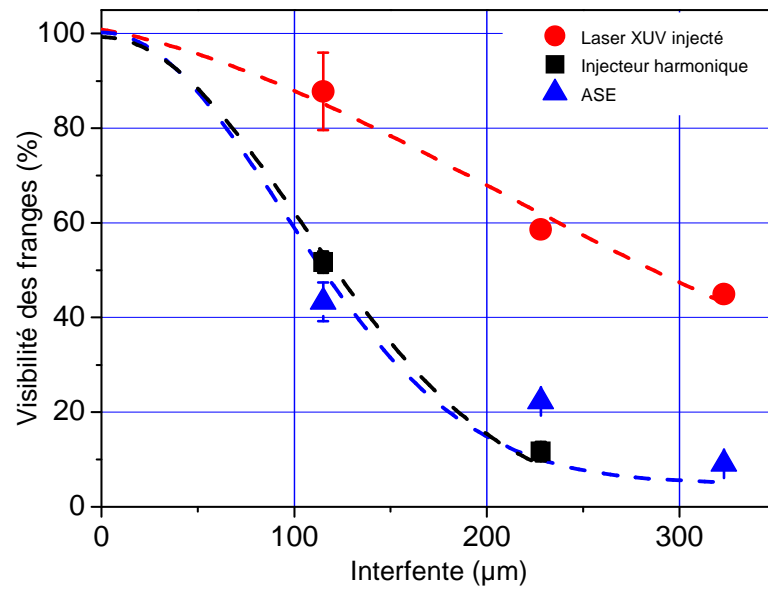


Figure 5.20 : Mesure du contraste pour différents espacements entre les fentes des harmoniques non amplifiées (en rouge), l'ASE (en bleu) et pour le laser XUV injecté (en rouge).

Ce résultat est en bon accord avec d'autres mesures réalisées par nos collègues américains [114] avec un plasma de cible solide pompé en incidence rasante qui montrent que la technique d'injection d'harmonique améliore les propriétés de cohérence spatiale. Si les prochaines mesures, et notamment celles du front d'onde, permettent d'y voir plus clair sur l'origine de cette spectaculaire amélioration, tout permet de penser que celle-ci est due au filtrage spatiale par le gain du faisceau harmonique amplifié.

## 5.3 Mesure du front d'onde du laser à 32,8 nm

Le « front d'onde » (voir Annexe B), surface d'onde ou encore phase spatiale d'un faisceau, est l'ensemble des points de l'espace où les vibrations sont isophases. La mesure de la surface d'onde d'un faisceau de lumière est une technique qui est longtemps restée confinée à la gamme spectrale allant du proche l'infrarouge au VUV. La transposition des techniques développées dans le visible dans le domaine XUV est très récente et est motivée par la prise de conscience que la maîtrise du front d'onde devient incontournable, même dans l'XUV, pour exploiter au mieux les sources réalisées dans cette gamme spectrale (focalisation, propagation....).

Aujourd'hui, peu de travaux sur la mesure du front d'onde des lasers XUV ont été entrepris. En ce qui concerne les harmoniques, différentes techniques de mesure ont été utilisées [115, 74] et les meilleures mesures rapportent une variation de front d'onde de l'ordre de  $\lambda/7$  RMS à 32 nm.

Pour ce qui concerne les lasers XUV par plasma-laser, les travaux réalisés sur un laser à 46,9 nm créé par une décharge capillaire dans de l'Argon néonoïde ont permis de montrer une variation moyenne du front d'onde de  $3\lambda$ , ce qui est, à notre connaissance, la meilleure mesure de front d'onde jamais publiée pour ce type de source [116]. D'autres mesures ont été réalisées sur un laser à zinc néonoïde (21,2 nm) et un laser OFI à xénon palladiomoïde fonctionnant en ASE ( $\lambda = 41,8$  nm) mais la calibration insuffisante du capteur n'a pas permis de tirer de conclusions définitives [117]. Par la suite, P. Mercère et collaborateurs [118] élaboreront le premier capteur de front d'onde Hartmann XUV que nous décrivons dans le paragraphe suivant.

### 5.3.1 Principe du capteur de front d'onde de type Hartmann

Le principe d'un capteur de front d'onde de type Hartmann est illustré sur la Figure 5.21. À l'aide d'une matrice de trous, le faisceau incident est échantillonné en une multitude de sous-faisceaux. De ce fait, chaque sous-faisceau se propage librement suivant une direction qui dépend de la courbure locale du front d'onde au niveau du trou. Notons que les trous de la grille du capteur que nous avons utilisés sont carrés et inclinés d'un angle de  $25^\circ$  afin de minimiser la contribution de la diffraction des trous adjacents [119].

Ces sous-faisceaux sont détectés sur un détecteur bidimensionnel, ici une caméra CCD (Charged Coupled Device), pour former dans ce plan de détection un réseau de taches. La distance entre la plaque de trous et le détecteur étant connue, une mesure de l'écart de ces taches dans le plan du détecteur par rapport à des positions dites de références permet alors d'obtenir une cartographie bidimensionnelle des pentes locales du front d'onde, c'est-à-dire les dérivées locales de la surface d'onde. Pour reconstruire la surface d'onde, nous utilisons la méthode zonale, où les valeurs de la phase sont estimées dans des zones locales de la pupille, par intégration de proche en proche de la fonction dérivée.

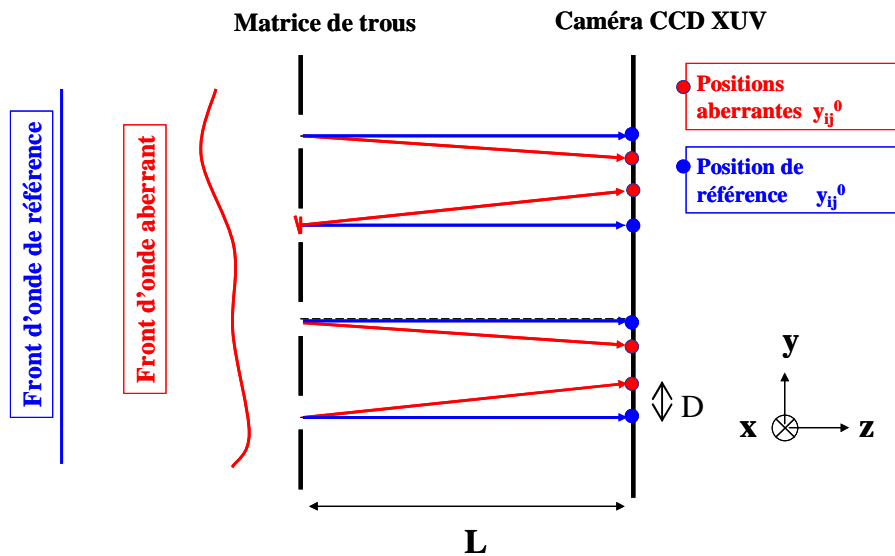


Figure 5.21 : Schéma de principe du senseur de front d'onde de type Hartmann, l'écart de position D entre la mesure et la référence permet de reconstruire la forme du front d'onde.

La calibration du système a été réalisée à l'aide d'une onde de référence sphérique, dépourvue de toute aberration, qui donne les positions de références  $(x_{ij}^0, y_{ij}^0)$ . Cette calibration a été réalisée en laissant diffracter le faisceau harmonique par un trou de  $10\ \mu\text{m}$  de diamètre placé à 50 cm de la source [77]. Compte tenu de cette mesure, la précision des mesures présentées ici est de  $0,04\lambda$  rms ou  $\lambda/25$  rms à 32 nm.



### 5.3.2 Montage expérimental

Pour garder une bonne résolution spatiale sur la CCD il est nécessaire d'éclairer un grand nombre de trous du capteur. Pour cela, nous avons placé le senseur de front d'onde le plus loin possible de la cellule à cause de la faible divergence de la source, soit à une distance de 4,15 m sur notre dispositif de la source. Malgré cette distance, le diamètre du faisceau harmonique amplifié au niveau du senseur n'était que de l'ordre de 6 mm (à  $1/e^2$ ). Cela ne représente que 15 % de la dimension optimale d'analyse du senseur. De plus, il n'était pas possible de mettre le détecteur dans l'axe de la source car le spectromètre est dans cet axe. Nous nous sommes donc servi du montage expérimental utilisé pour la mesure d'empreinte de faisceau, c'est-à-dire avec le filtre aluminium et un miroir multicouche, et nous avons rajouté un autre miroir multicouche, identique au précédent, placé avec  $45^\circ$  d'incidence juste avant la caméra CCD XUV. Pour avoir assez de signal sur le détecteur il a fallu accumuler entre 5 et 10 tirs pour le faisceau harmonique amplifié et jusqu'à 100 tirs pour le faisceau harmonique sans amplification. Le signal ASE étant plus faible et surtout très divergent, nous n'avons pu mesurer de front d'onde. Il aurait fallu pour ceci accumuler plusieurs milliers de tirs.

### 5.3.3 Mesure de la distorsion du front d'onde

La Figure 5.22(a) nous donne un exemple des valeurs mesurées  $\delta(\theta_x, \theta_y)$  par le senseur de front d'onde pour le faisceau harmonique non amplifié. Nous pouvons observer sur cette figure que les harmoniques possèdent des variations dans la mesure de la phase de l'ordre de  $0,3 \lambda$  (RMS) (soit  $\approx \lambda/3$ ). Notons que le front d'onde des harmoniques présente une aberration d'astigmatisme flagrante. Nous avons expliqué précédemment que cet astigmatisme provient d'un léger désalignement du miroir torique de couplage. La Figure 5.22(b), quant à elle, nous montre les variations du front d'onde dans le cas du laser XUV injecté. Comme nous l'avons observé précédemment, le profil injecté prend une forme circulaire et régulière. Mais l'effet le plus marquant est sans aucun doute la réduction spectaculaire des variations de front d'onde  $\delta(\theta_x, \theta_y)$ . En effet, nous obtenons ici  $\delta(\theta_x, \theta_y) = 0,058 \lambda$  ce qui correspond à  $\lambda/17$  (soit 1,9 nm). Comme nous l'avons rappelé

précédemment, cette qualité de front d'onde n'a jamais été mesurée jusqu'à présent (à notre connaissance) dans cette gamme de longueur d'onde et a fortiori pour un laser XUV par plasma-laser. Si nous considérons le critère de Maréchal [120], stipulant qu'une source est limitée par la diffraction si les défauts de front d'onde sont inférieurs à  $\lambda/14$  (équivalent à un rapport de Strehl de 0,8), nous pouvons aisément conclure que la limite de diffraction est atteinte ce qui laisse entrevoir de bons espoirs pour ce qui concerne la focalisation de cette source.

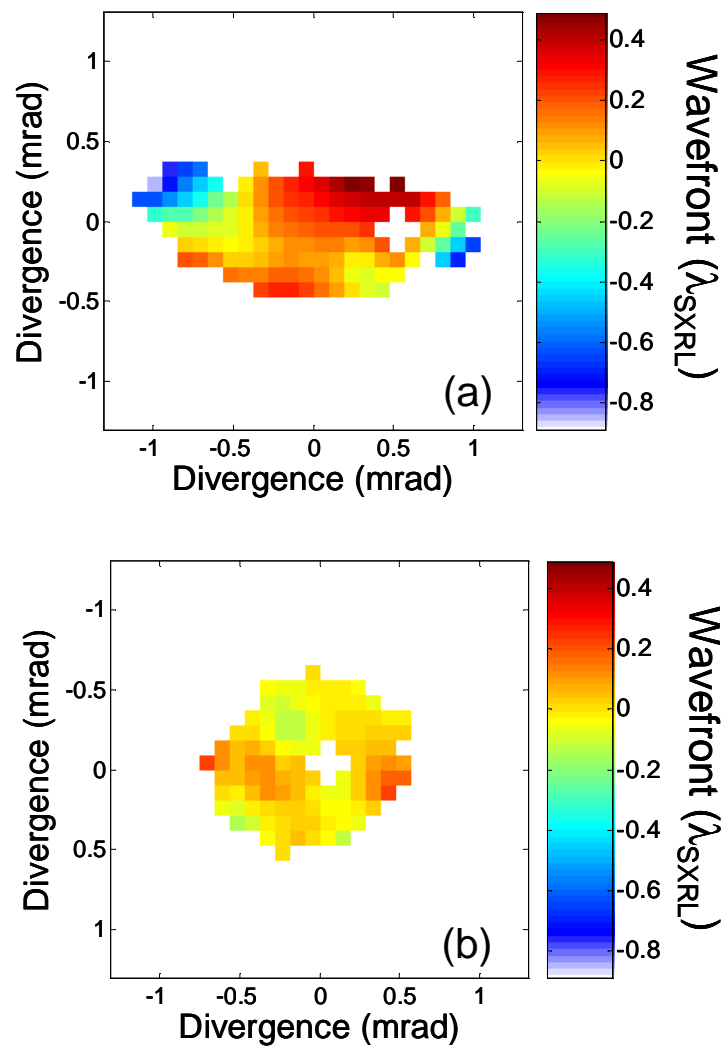


Figure 5.22 : Mesure de la variation du front d'onde des harmoniques (a) et du laser XUV injecté (b).

Nous avons mesuré la variation du front d'onde en fonction de la pression de krypton dans la cellule amplificatrice (cf Figure 5.23 et Figure 5.24). Les résultats sont reportés dans la Figure 5.25. Contrairement à ce que nous avons observé pour le profil spatial, le front d'onde RMS varie peu pour des pressions comprises entre 15 et 40 mbar, cette variation se situant autour de  $0,062 \lambda$  ( $\lambda/16$ ). La variation moyenne est plus importante pour une pression de 20 mbar, autour de  $0,08 \lambda$ , probablement du fait des variations de couplage spatial harmonique-amplificateur. A noter que les mesures à 0 mbar correspondent à celles des harmoniques sans injection.

Si nous regardons les fronts d'ondes de plus près, nous nous apercevons que la majorité des mesures présente un peu d'astigmatisme à  $90^\circ$  déjà présent sur le front d'onde du faisceau harmonique. A la vue de ces résultats, il devrait être encore possible d'améliorer le front d'onde du laser XUV injecté en optimisant au mieux le front d'onde du faisceau harmonique lui-même.

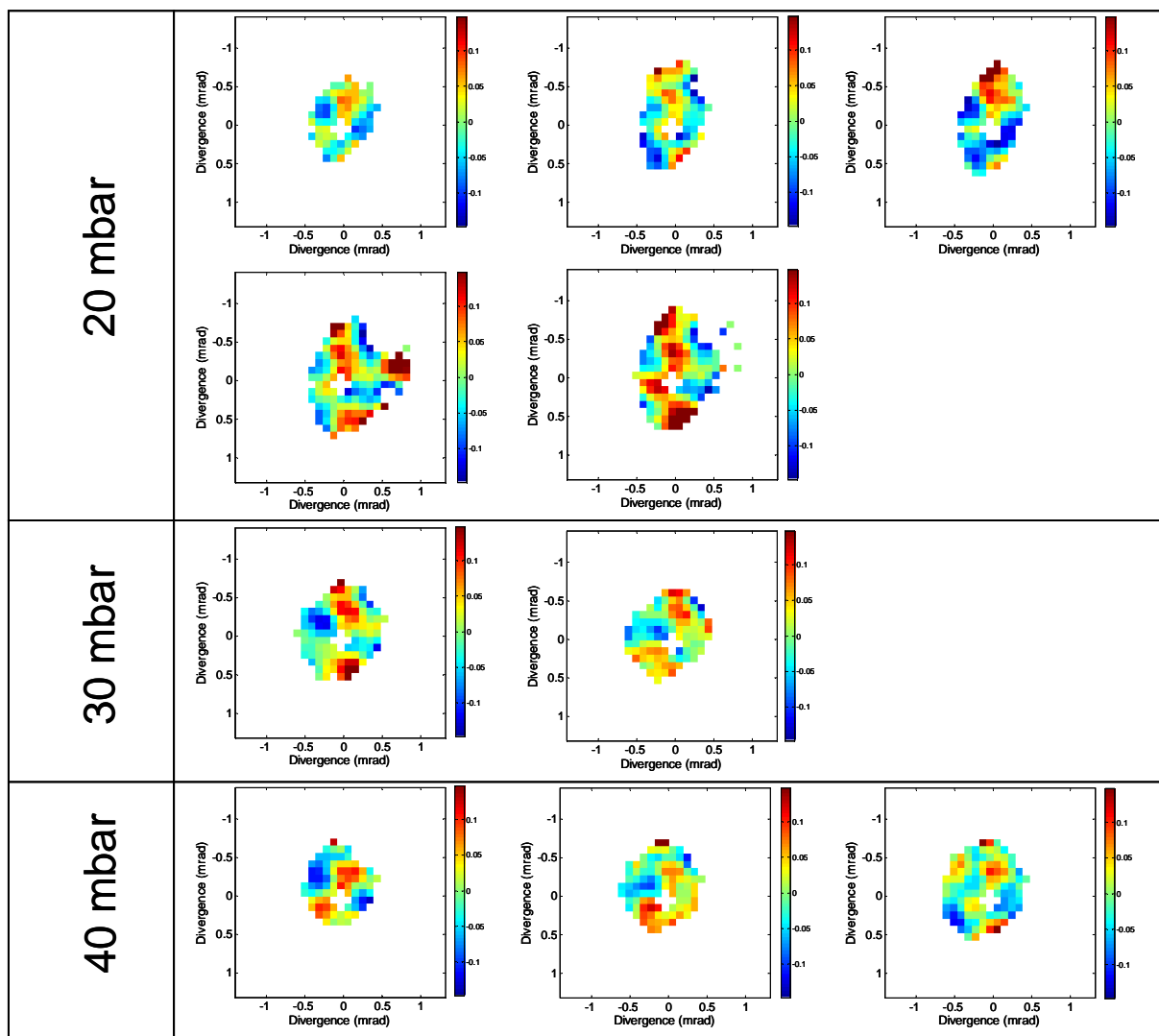


Figure 5.23 : Mesure de la variation du front d'onde du faisceau du laser XUV injecté pour différentes pressions.

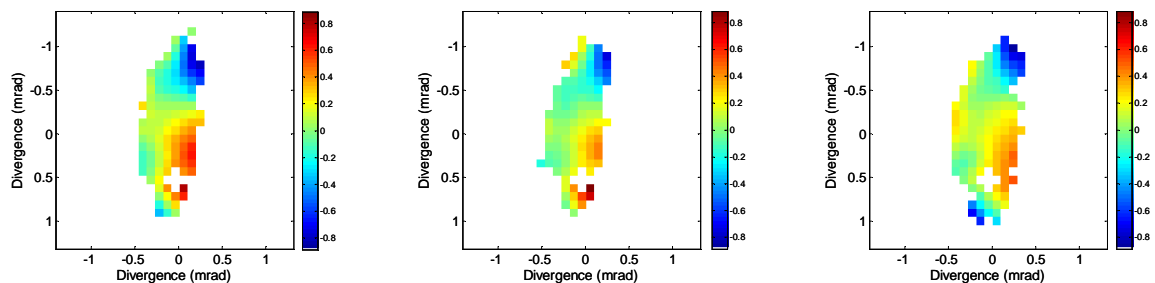


Figure 5.24 : Trois mesures différentes de la variation du front d'onde de l'injecteur harmonique. Les trois fronts d'onde mesurés montrent la même aberration d'astigmatisme.

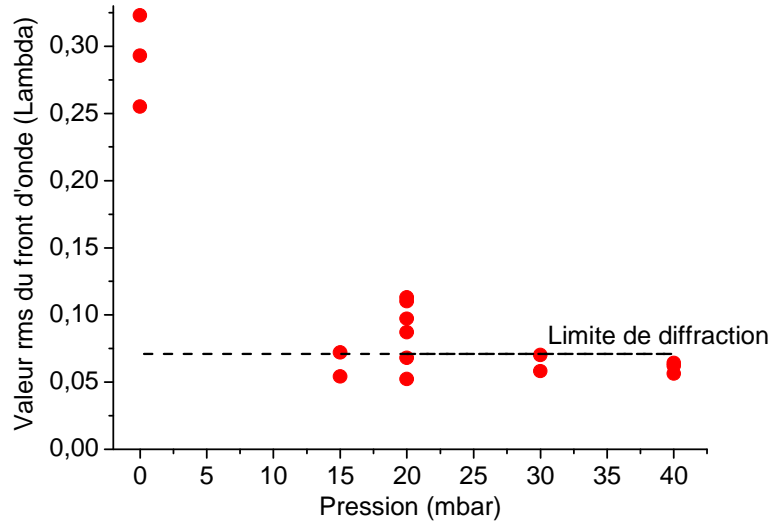


Figure 5.25 : Mesures RMS de la variation du front d'onde du laser XUV injecté en fonction de la pression.

## 5.4 Modélisation simple du filtrage spatial par le gain

### 5.4.1 Reconstruction de la source

Les mesures réalisées avec le senseur de front d'onde nous donnent simultanément une information sur la phase et sur l'intensité du laser XUV dans le plan du détecteur. Ces deux mesures permettent d'obtenir l'amplitude complexe du laser XUV. Il nous est donc possible de reconstruire le champ XUV à la sortie de l'amplificateur, et ainsi de connaître les dimensions transverses du plasma amplificateur ce qui nous permettra de mieux comprendre comment le faisceau harmonique est couplé au plasma.

Dans le plan du senseur de front d'onde, l'amplitude complexe du champ laser injecté peut s'écrire :

$$E_H(\theta_x, \theta_y) = \sqrt{I_{SXRL}(\theta_x, \theta_y)} \exp \left[ i \frac{\pi}{\lambda_{SXRL}} \left( \frac{x^2 + y^2}{z_H} + 2\delta(\theta_x, \theta_y) \right) \right] \quad (68)$$

Dans cette équation,  $z_H$  est la distance entre le détecteur et l'entrée du plasma,  $\theta_x = x/z_H$  et  $\theta_y = y/z_H$  sont les divergences du faisceau dans les deux directions perpendiculaires à l'axe de propagation,  $I_{sxl}$  est l'intensité comme représentée sur la Figure 5.4 et  $\delta(\theta_x, \theta_y)$  représente la variation du front d'onde avec  $\delta(\theta_x, \theta_y) = 0$  correspondant à une source sans aberration.

L'amplitude complexe (équation 68) est connue dans le plan du détecteur pour chacun des sous faisceaux créés par la matrice de trous du senseur. En utilisant le test par minimisation du  $\chi^2$ , ces valeurs sont projetées sur la base des polynômes d'Hermite-Gauss (HG) [121] sous la forme :

$$E_H(x, y, z_H) = A \sum_{l,m} \alpha_{l,m} v_l(x, z_H) v_m(y, z_H) \quad (69)$$

où  $v_k(u, z)$  est le projeté orthogonal des modes de Hermite-Gauss.

$$v_k(u, z) = h_k \left( \frac{\sqrt{2}u}{w(z)} \right) \exp \left[ i \frac{\pi u^2}{\lambda R(z)} - \frac{u^2}{w^2(z)} - ik \tan^{-1} \left( \frac{z}{z_0} \right) \right] \quad (70)$$

Dans cette équation,  $h_k$  représente les polynômes d'Hermite normalisés,

$w(z) = w_0 \sqrt{1 + z^2/z_0^2}$ ,  $z_0 = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$  la longueur de Rayleigh et  $R(z) = z + z_0^2/z$ , le rayon de

courbure,  $w_0$  représente le rayon de courbure (waist) du faisceau à  $z = 0$ .

Les fonctions  $v_l(x, z_H) v_m(y, z_H)$  sont les solutions des équations de Maxwell dans le vide. A partir du moment où les valeurs de  $w_0$  et de  $\alpha_{l,m}$  sont connues, nous pouvons reconstruire l'amplitude complexe, soit des harmoniques sans amplification, soit du laser XUV injecté où nous le souhaitons sur l'axe de propagation du faisceau laser.

La Figure 5.26 montre les résultats de la reconstruction du profil d'intensité du laser XUV injecté à la sortie de la colonne de plasma pour différentes pressions de gaz dans la cellule amplificatrice : 0, 15, 20, 30 et 40 mbar (0 mbar correspond au faisceau harmonique sans amplification). Comme nous pouvions nous y attendre le profil d'intensité des harmoniques présente un profil elliptique avec des dimensions de 70  $\mu\text{m}$

$\times 110 \mu\text{m}$  (à  $1/e^2$ ). Aussi, nous observons de petites structures plus ou moins intenses qui peuvent être dues aux variations de pointé du laser infrarouge générateur.

Après amplification par une colonne de plasma de 7 mm de long, le profil du rayonnement à 32,8 nm change radicalement. Les profils d'intensité sont plus symétriques et de forme circulaire. Les dimensions transverses sont réduites significativement jusqu'à un diamètre de l'ordre de 55  $\mu\text{m}$  entre 15 et 40 mbar et varient peu quand la pression augmente dans la cellule amplificatrice. Cela montre qu'aucun effet visible sur les dimensions du plasma n'a pu être mis en évidence en fonction de la pression comme peut le montrer la Figure 5.27. Cependant, ces reconstructions donnent des valeurs de dimensions transverses de l'amplificateur XUV en bon accord (quoique légèrement inférieures) avec les valeurs extraites des cartes de gain calculées. Rappelons que la carte de gain donnait une colonne amplificatrice de 70  $\mu\text{m}$  de diamètre (cf. figure 3.13) dans nos conditions expérimentales. Cette reconstruction montre clairement que le faisceau harmonique est bien plus large que le plasma amplificateur et que ce dernier ne peut amplifier ici que 60 % de l'énergie de l'harmonique incidente. Le filtrage spatial qui a donné lieu à l'amélioration des qualités spatiales du faisceau après amplification est, dans notre cas, qualitativement illustré.

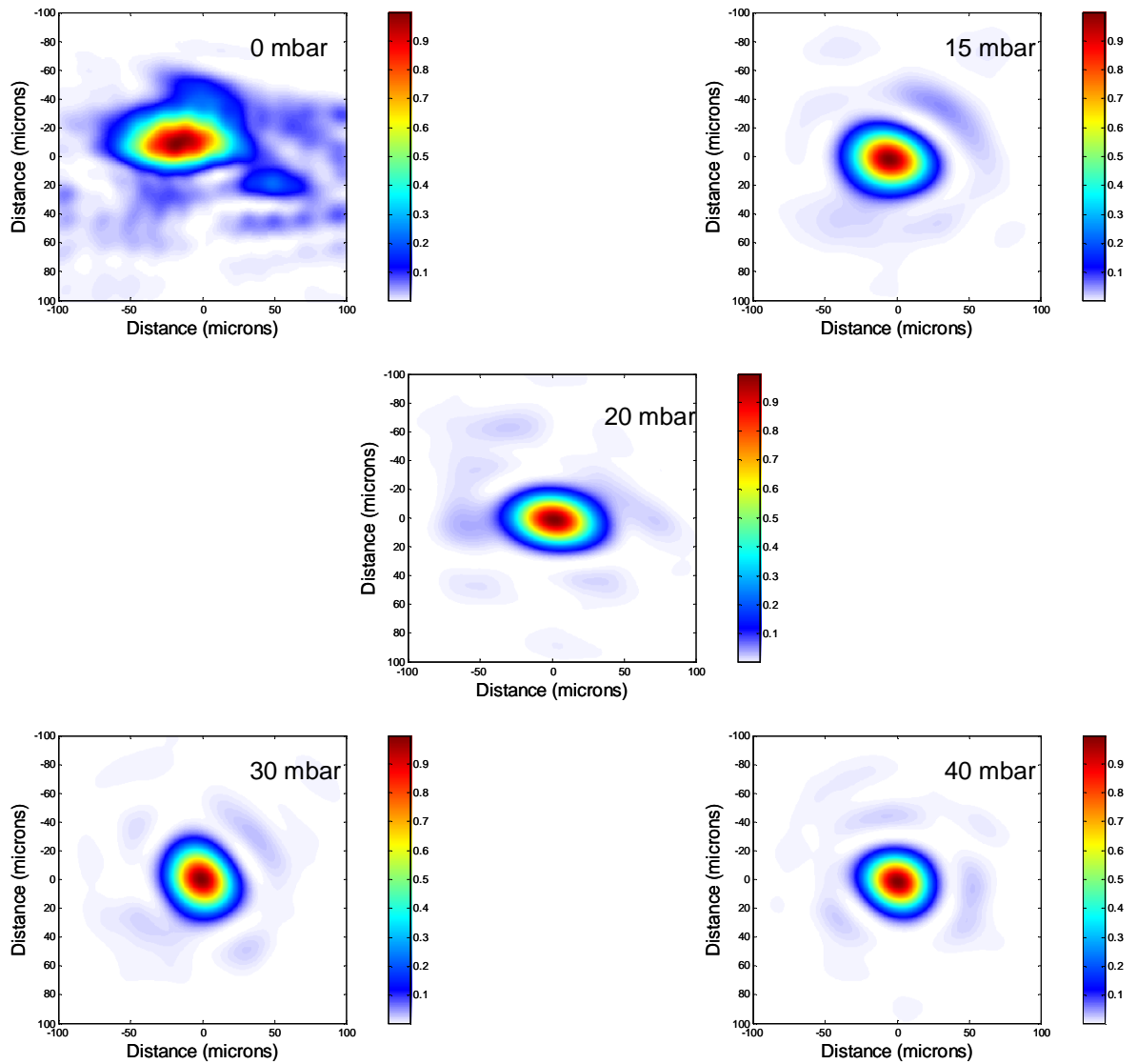


Figure 5.26 : Reconstruction à la sortie du plasma amplificateur du profil d'intensité du laser XUV injecté pour différentes pressions de gaz dans la cellule amplificatrice.



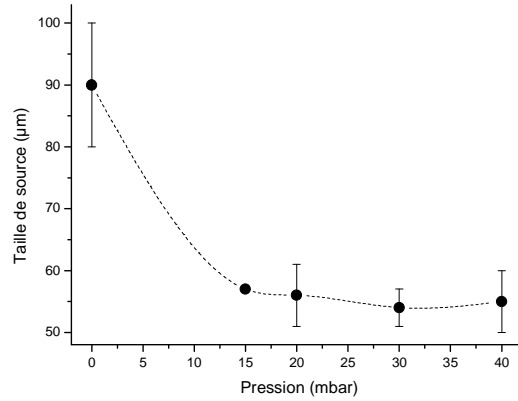


Figure 5.27 : Calcul de la dimension moyenne du laser XUV injecté à la sortie du plasma en fonction de la pression dans la cellule amplificatrice.

### 5.4.2 Filtrage par le gain

Pour comprendre comment le filtrage spatial est responsable de la réduction de la distorsion du front d'onde, nous pouvons utiliser un modèle simple dans lequel le plasma est considéré comme un amplificateur parfait. Pour ce faire, nous allons calculer l'amplitude complexe du faisceau harmonique non amplifié, avec la méthode décrite précédemment, au niveau du plasma amplificateur. Nous lui appliquerons un masque circulaire de dimension variable pour simuler le plasma amplificateur. Nous allons ensuite propager le rayonnement amplifié simulé jusqu'au niveau du senseur de front. Ainsi nous obtiendrons son front d'onde et sa distribution d'énergie en fonction des dimensions du plasma amplificateur. Nous allons pouvoir comparer ces résultats numériques aux résultats expérimentaux : front d'onde et divergence du faisceau.

Nous avons donc fait l'approximation que le plasma est un cylindre homogène de longueur  $L = 7,5$  mm et de rayon  $R$ , la valeur de la longueur de Rayleigh  $z_0$  que nous avons calculée était supérieure d'un ordre de grandeur à  $L$ . Nous pouvons comparer le plasma amplificateur à un cylindre car les profils de gain, intégré sur toute la longueur du plasma, nous ont montré des bords francs (voir Figure 5.10). Dans ce cas, l'amplitude complexe pour l'harmonique amplifiée à la sortie du plasma prend la forme simple suivante :

$$E_{ssxrI}(x, y, z = L) = \sqrt{G} E_H(x, y, z = 0) H\left(R - \sqrt{x^2 + y^2}\right) \quad (71)$$

Avec  $G$  le facteur d'amplification,  $H(u)$  la fonction d'Heaviside et  $E_H$  l'amplitude complexe pour les harmoniques d'ordres élevés.

L'équation (69) nous donne l'amplitude du champ  $E$  des harmoniques à l'entrée du plasma. Du fait de la valeur élevée de  $G$  mais aussi de l'absorption du rayonnement par le gaz non ionisé, l'amplitude du champ en dehors de la colonne de plasma est négligée. Dans cette même équation, en dehors du facteur constant  $G$ , nous constatons que l'influence du plasma amplificateur sur les harmoniques est identique à celle d'un diaphragme circulaire. L'amplitude complexe du champ à la sortie du plasma,  $E_{ssxrI}(x, y, z = L)$  déterminée par l'équation (71), est projetée sur la base de Hermite-Gauss, dans le but de déduire l'amplitude complexe  $E_{ssxrI}(x, y, z = z_H)$  au niveau du détecteur de front d'onde.

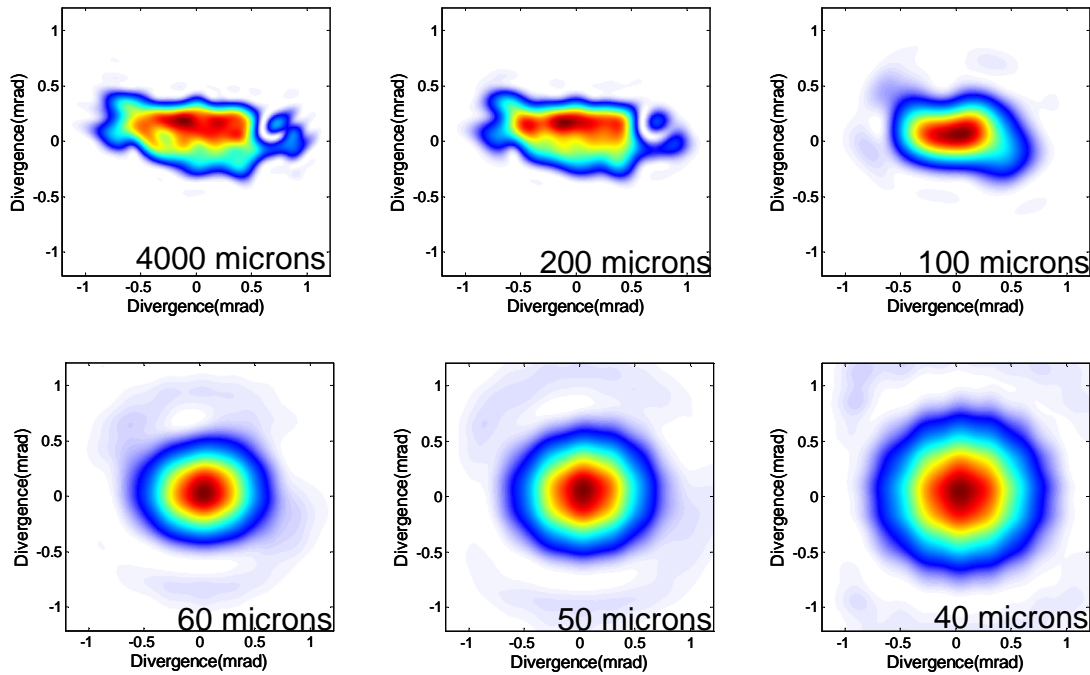


Figure 5.28 : Reconstruction 2D du champ lointain de l'harmonique après le filtrage spatial pour différentes tailles de plasmas.

La Figure 5.28 représente la distribution de l'intensité déterminée à l'aide de l'expression du champ  $E_{\text{xxxl}}(x, y, z = z_H)$  en fonction de différents diamètres de la colonne de plasma. Comme le montre cette figure, l'empreinte de faisceau du laser XUV injecté est fortement modifiée pour des diamètres inférieurs à 200  $\mu\text{m}$ . Pour des diamètres supérieurs, entre 200  $\mu\text{m}$  et 4000  $\mu\text{m}$ , il n'y a pas de changement de profil et nous retrouvons l'empreinte du faisceau harmonique sans amplification. En réduisant le diamètre du plasma jusqu'à 60  $\mu\text{m}$ , le faisceau amplifié évolue d'une forme astigmatique vers un profil parfaitement circulaire (ce qui est expérimentalement observé). Pour un plasma de diamètre de 60  $\mu\text{m}$ , la divergence du laser XUV injecté simulé est de 0,46 mrad x 0,57 mrad, ce qui est légèrement inférieur aux mesures expérimentales (0,67 mrad). Pour des diamètres inférieurs à 50  $\mu\text{m}$ , la divergence du faisceau du laser XUV injecté augmente à cause des effets de diffraction.

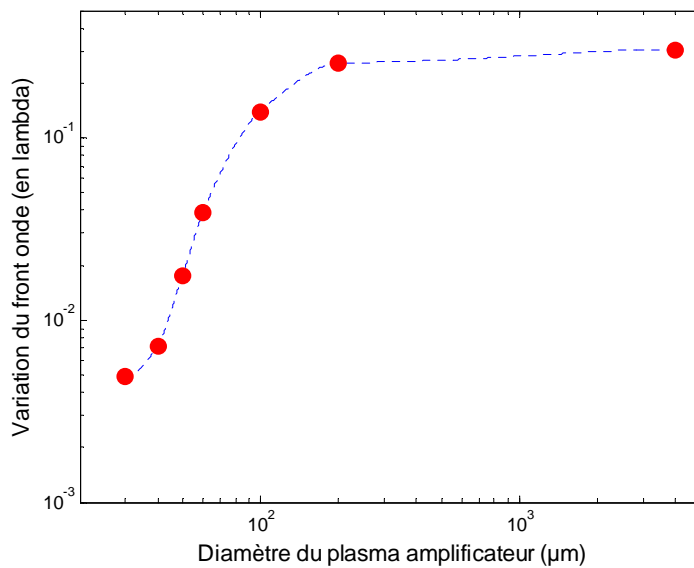


Figure 5.29 : Variations calculées du front d'onde du laser injecté à 32,8 nm en fonction du diamètre du plasma amplificateur.

Après filtrage par un amplificateur parfait, il est aussi possible de reconstruire le front d'onde de la source à 32,8 nm à la distance à laquelle nous l'avons mesuré. Ces reconstructions du front d'onde en fonction du diamètre du plasma amplificateur sont reportées sur la Figure 5.29. Il apparaît que pour un diamètre de plasma supérieur à 200  $\mu\text{m}$  le front d'onde de l'harmonique initialement à  $\lambda/3$  est très peu modifié. Par contre dès que le diamètre du plasma est inférieur à 100  $\mu\text{m}$ , la valeur RMS du front d'onde est

fortement réduite après amplification. Ici, la limite de diffraction ( $\lambda/14$ ) est atteinte pour un diamètre d'amplificateur de 72  $\mu\text{m}$ , valeur qui est en bon accord avec ce que donnent les dimensions transverses de la zone de gain données par nos simulations présentées sur la Figure 2.18.

## **Conclusion**

Dans ce chapitre, nous avons présenté une étude détaillée des propriétés spatiales du laser XUV injecté. Nous avons mis en évidence que le profil spatial du laser à 32,8 nm est fortement influencé par le couplage géométrique entre le faisceau harmonique et le plasma. En effet les dimensions transverses de l'amplificateur étant inférieures à celles du faisceau harmonique à amplifier, le milieu amplificateur joue alors le rôle d'un filtre spatial. Ceci a de fortes conséquences sur la distribution spatiale, la cohérence spatiale et le front d'onde du rayonnement amplifié.

Après amplification, le profil d'intensité du laser XUV injecté est plutôt circulaire avec une divergence comprise entre 0,65 à 0,85 mrad selon les conditions de densité. L'énergie du faisceau est de l'ordre du  $\mu\text{J}$  mais d'autres mesures seront nécessaires pour avoir une estimation plus précise.

Nous avons également mesuré la cohérence transverse du laser XUV injecté et nous l'avons comparée avec celles du faisceau harmonique et de l'émission ASE. Les résultats ont montré une amélioration importante de la cohérence transverse par l'amplification du faisceau harmonique dû au filtrage spatial.

Enfin les mesures du front d'onde réalisées à l'aide d'un senseur de front d'onde de type Hartmann ont montré que, dans certaines conditions de densité, le front d'onde du rayonnement amplifié est aussi bon que  $\lambda/16$  RMS, la limite de diffraction étant atteinte pour la première fois pour ce type de sources. Ce filtrage spatial est bon accord avec les dimensions transverses calculées du plasma amplificateur.

---

# Conclusion générale et perspectives

## Conclusion générale

Les travaux réalisés au cours de cette thèse s'inscrivent dans un contexte de recherche de sources XUV de plus en plus énergétiques, de courtes durées d'impulsions et possédant de bonnes propriétés optiques. Ils ont consisté en l'étude d'une nouvelle géométrie de laser XUV inspirée des chaînes lasers de puissance développées dans l'infrarouge. Ce schéma « oscillateur-amplificateur », proposé dès 1995 a consisté à injecter une source très brève peu énergétique mais possédant de bonnes propriétés de cohérence, ici une source harmonique d'ordre élevé, dans un amplificateur plasma créé par OFI.

Dans un premier temps, nous nous sommes intéressés à l'influence des différents paramètres de création du plasma qui jouaient un rôle important sur le processus d'amplification. L'évolution du signal en fonction de la longueur de cellule a permis d'estimer le coefficient de gain de l'amplificateur de mettre l'accent sur l'importance de l'adéquation entre la largeur spectrale des harmoniques injectées et celle du gain de l'amplificateur.

Aussi, nous avons démontré expérimentalement que la durée du gain diminuait avec la pression du gaz dans la cellule amplificatrice et que le moment d'amplification maximum est aussi dépendant de cette pression. Ces observations sont en bon accord avec les résultats des calculs du code collisionnel radiatif qui décrit la dynamique des populations. De plus, nous avons montré que la longueur du milieu amplificateur diminuait avec la pression mettant ainsi en évidence le phénomène d'absorption du laser XUV injecté par le gaz résiduel.

Enfin, l'étude de l'influence de la polarisation du laser de pompe sur l'amplification du laser XUV a montré un maximum pour une polarisation proche de la polarisation circulaire. Mais contrairement aux simulations, nous avons observé une faible amplification en polarisation presque linéaire. Une étude plus poussée devra être réalisée sur ce point.

Dans ce manuscrit, nous avons présenté une étude des propriétés spectro-temporelles de notre source à 32,8 nm à l'aide d'un interféromètre à différence de marche variable. Cette étude a montré que, du fait de la forte contribution de l'élargissement inhomogène dû à l'effet Doppler, le profil de raie laser XUV injecté est proche d'un profil gaussien. Nous avons déterminé une largeur spectrale très fine ( $\Delta\lambda = 3,5 \pm 0,2 \text{ m}\text{\AA}$ ). Ce résultat est en accord avec celui obtenu théoriquement à l'aide d'un code décrivant l'amplification de la raie de l'harmonique. De plus, ces résultats ont montré que notre laser injecté à 32,8 nm fonctionne en limite de Fourier (ou possède une cohérence temporelle totale) et a permis de donner une estimation de la durée d'émission autour de 5 ps. Cependant, pour confirmer ce résultat une mesure directe de la durée d'émission devra être réalisée.

Enfin, nous avons réalisé une étude détaillée sur les propriétés spatiales du laser XUV injecté. Nous avons montré que notre source était peu divergence (entre 0,65 et 0,85 mrad), qu'elle présentait un profil circulaire et possédait une énergie de l'ordre du  $\mu\text{J}$ . De plus, le laser XUV injecté possède une bonne cohérence transverse et, pour la première fois pour ce type de source, nous avons pu montrer que la source est limitée par la diffraction. A l'aide de simulations, nous avons démontré que ces très bonnes propriétés spatiales étaient dues au filtrage spatial par le gain de l'amplificateur OFI.

Au final, nous pouvons dire que le laser XUV injecté à 32,8 nm que nous avons étudié ici est le premier laser XUV possédant à la fois de bonnes propriétés spatiales et spectro-temporelles et cela avec une énergie raisonnable. A l'heure actuelle, cette source a atteint le niveau de maturité nécessaire pour envisager sereinement de nombreuses applications.

## **Perspectives**

A court terme, il serait intéressant d'étudier de quelles manières il est possible d'augmenter l'énergie. En effet, il a été montré qu'en utilisant un miroir sphérique de deux mètres de focale pour générer le plasma OFI, l'énergie de sortie de l'émission ASE peut être augmentée d'un facteur 15 par rapport à une focale de un mètre et même d'un facteur 30 en utilisant des tubes capillaires au lieu de cellules [49]. Une autre méthode consisterait à utiliser des lasers plus puissants pour augmenter les dimensions transverses du plasma amplificateur.

Un autre moyen d'augmenter l'énergie serait d'adapter la technique d'injection d'harmonique dans des plasmas plus denses produits sur cible solide. Ainsi, cela permettrait d'atteindre des énergies de l'ordre d'une (ou quelques) centaine de microjoules par impulsion. De plus, l'injection d'harmonique sur cible solide ouvrirait la possibilité de réduire la durée d'impulsion à quelques centaines de femtosecondes ; la largeur spectrale du gain augmente avec les effets de l'élargissement Doppler et collisionnel causés respectivement par l'augmentation de la température ionique et celle de la densité électronique dans les plasmas produits sur cible solide.

Une autre perspective serait d'atteindre des longueurs d'onde de plus en plus petites. L'extension du schéma OFI vers de plus petites longueurs d'onde est possible mais nécessite beaucoup d'énergie de pompe. L'injection d'harmonique dans du xénon nickeloïde, dont la transition 4d-4p émet autour de 10 nm, serait très intéressante mais cela nécessiterait un éclairage du laser de pompe supérieur à  $10^{19}$  W/cm<sup>2</sup> et donc l'utilisation d'une chaîne laser PW. Pour descendre dans les plus petites longueurs d'onde, il est nécessaire d'étudier d'autres schémas de pompage.

Le schéma par recombinaison, même si il est moins robuste et plus difficile à mettre en œuvre que le schéma collisionnel, offre une meilleure efficacité et permet d'obtenir des longueurs d'onde plus courtes. Par exemple, l'amplification de la raie 2p-2s émettant autour de 2,5 nm dans l'azote hydrogénoïde serait très intéressante à étudier avec un laser comme celui de la salle jaune. Toutefois, il faut garder à l'esprit que le schéma de recombinaison nécessite un plasma froid et dense et que tout doit être mis en œuvre pour que le chauffage des électrons au cours de l'ionisation soit minimisé.



Un autre schéma nous permettrait d'atteindre des longueurs d'onde de l'ordre du nanomètre : la photoionisation en couche interne d'atome neutre. Dans ce schéma, les électrons internes d'un matériau neutre peuvent être arrachés par la présence d'un rayonnement X intense et rapide produisant une inversion de population de l'atome une fois ionisé. La grande difficulté de mise en œuvre de ce schéma réside dans le fait que l'inversion de population ne dure que quelques dizaines de femtosecondes à cause des effets parasites comme l'effet Auger qui est très rapide et relativement important.

Un projet financé à travers une ANR et reposant sur ce schéma de pompage est en cours de réalisation dans notre laboratoire en collaboration avec le LULI et le LPGP. Le projet a pour but d'étudier l'amplification de la raie  $K_\alpha$  du néon à 15 Å. La source de rayonnement X que nous allons utiliser pour pomper notre milieu lasant est une source dite « Bêatron ». Cette source, fonctionnant dans la gamme spectrale du KeV, est collimatée (20 mrad), intense et extrêmement brève (20 fs). Elle est produite par un faisceau d'électrons relativistes généré lui-même par l'interaction Laser-Plasma. De plus, la source bêatron, du fait de sa divergence, peut être collectée et focalisée dans notre milieu lasant dans une géométrie longitudinale. Cette géométrie de pompage présente l'avantage de synchroniser le court instant pendant lequel le milieu est amplificateur avec la propagation du rayonnement X amplifié dans le milieu comme il a été démontré pour le schéma OFI.

Finalement, il faut souligner que la technique d'injection d'harmonique que nous avons étudiée tout au long de cette thèse doit être considérée comme étant incontournable sur toutes les installations laser XUV produit par impulsions courtes. En effet, les apports de cette technique sur la qualité de faisceau, et à plus moyen terme sur la réduction de la durée d'impulsion, rend ce type de source attractif pour de nombreuses applications dans la gamme spectrale de quelques nanomètres à 40 nm.

---

---

# Annexes :

## Annexe A : Rappels sur la notion de cohérence

### La cohérence spatiale

La cohérence en physique est l'ensemble des propriétés de corrélation d'un système ondulatoire. Son sens initial était la mesure de la capacité d'onde(s) à donner naissance à des interférences du fait de l'existence d'une relation de phase définie.

Pour définir la cohérence entre deux points d'émission P1 et P2 du faisceau, séparés dans le temps ou l'espace, nous utilisons la fonction de cohérence mutuelle,  $\Gamma$ . Si nous associons les champs électriques  $E_1$  et  $E_2$  en P1 et P2 respectivement. Cette fonction de cohérence mutuelle s'écrit :

$$\Gamma(P_1, P_2, \tau) = \langle E_1^*(t + \tau) E_2(t) \rangle \quad (72)$$

Où  $\tau$  correspond à l'intervalle de temps séparant les deux émissions en un point P quelconque de l'espace à l'instant t.

Par la même occasion nous pouvons introduire le degré de cohérence complexe normalisée par l'égalité suivante :

$$\gamma_{12}(\tau) = \frac{\Gamma(P_1, P_2, \tau)}{\sqrt{\Gamma(P_1, P_1, 0) \Gamma(P_2, P_2, 0)}} \quad (73)$$

Cette grandeur conduit à un contraste ou visibilité des franges de la forme :

$$C = \frac{I_{MAX} - I_{MIN}}{I_{MAX} + I_{MIN}} = \frac{2\sqrt{I_1(P) I_2(P)}}{I_1(P) + I_2(P)} \left| \gamma_{12}(\tau) \right| \quad (74)$$

Si  $I_1 = I_2$ , nous avons alors  $C = \left| \gamma_{12}(\tau) \right|$  et il est alors possible de discuter sur trois cas :

- Si  $C = 1$ , nous avons un contraste maximum et nous retrouvons la figure de cohérence de deux ondes totalement cohérentes.

- Si  $C = 0$ , il n'y a pas apparition de franges et il s'agit de deux ondes totalement incohérentes.
- Si  $0 < C < 1$ , Les franges d'interférences apparaissent en parties brouillées. Les deux ondes sont alors que partiellement cohérentes.

La cohérence spatiale est définie par la corrélation de deux champs électromagnétiques émis par deux point  $P_1$  et  $P_2$  distincts du faisceau à la même instant  $t$  ( $\tau = 0$ ). La fonction de cohérence spatiale,  $\Gamma(P_1, P_2, 0)$ , et le degré de cohérence spatiale,  $\gamma_{12}(0)$ , s'écrivent alors respectivement :

$$\Gamma(P_1, P_2, 0) = \langle E_1^*(t) E_2(t) \rangle \quad (75)$$

$$\gamma_{12}(0) = \frac{\Gamma(P_1, P_2, 0)}{\sqrt{\Gamma(P_1, P_1, 0) \Gamma(P_2, P_2, 0)}} \quad (76)$$

Un faisceau possédera une grande cohérence spatiale si le contraste des franges reste élevé malgré un écart important entre les éléments diffractifs.

## La cohérence temporelle

Pour la cohérence temporelle, nous calculons la corrélation de deux champs électromagnétiques émis par un même point de la source mais à des instants différents ( $\tau \neq 0$ ). La fonction de cohérence temporelle,  $\Gamma(P_1, P_1, \tau)$ , et le degré de cohérence temporelle,  $\gamma_{11}(\tau)$ , s'écrivent alors respectivement :

$$\Gamma(P_1, P_1, \tau) = \Gamma_{11}(\tau) = \langle E_1^*(t + \tau) E_1(t) \rangle \quad (77)$$

$$\gamma_{11}(\tau) = \frac{\Gamma(P_1, P_1, \tau)}{\Gamma^2(P_1, P_1, 0)} \quad (78)$$

D'après le théorème de Wiener-Khintchine, la fonction de cohérence temporelle est la transformée de Fourier de la densité spectrale de puissance du rayonnement  $\rho(\nu)$  :

$$\Gamma_{11}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} \rho(\nu) e^{-2\pi i \nu \tau} d\nu \quad (79)$$

Par conséquent, la cohérence temporelle est inversement proportionnelle à la largeur spectrale  $\Delta\lambda$  du rayonnement. La cohérence temporelle sera d'autant plus grande que la source sera monochromatique.

De plus nous définirons le temps de cohérence  $\tau_c$  comme la différence de marche pour laquelle la visibilité maximum est atténuée d'un facteur  $1/e$ .



## Annexe B : Rappels sur la notion front d'onde

Le « front d'onde », surface d'onde ou encore phase spatiale d'un faisceau, est l'ensemble des points de l'espace où les vibrations de l'espace sont isophases. Ce qui implique que le front d'onde d'un faisceau n'a de sens physique que dans le cas où le faisceau est cohérent. Pour pouvoir quantifier un front d'onde, nous devons mesurer son écart avec une onde de référence plane ou sphérique. Cet écart est la différence de chemin optique  $\delta(x, y)$  entre deux points  $P(x, y)$  et  $P'(x, y)$  appartenant respectivement à la surface d'onde plane de référence et à la surface d'onde du faisceau à mesurer. Il se mesure en  $\mu\text{m}$  ou en fraction de longueur d'onde,  $\lambda$ .

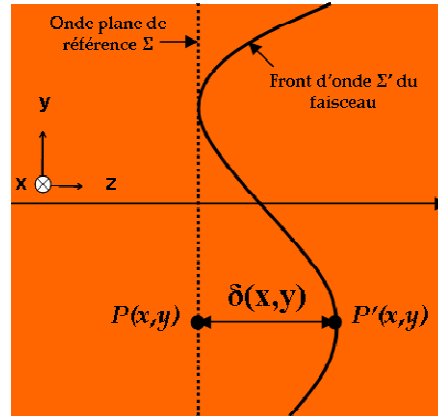


Figure 0.1 : Le front d'onde  $\Sigma'$  d'un faisceau est quantifié par l'écart  $\delta(x, y)$  à une onde plane  $\Sigma$ , et s'exprime en  $\mu\text{m}$  ou en fraction de longueur d'onde.

De plus, deux grandeurs permettent généralement de caractériser et de rendre compte de la qualité du front d'onde d'un faisceau :

- La valeur crête à crête ou encore PV (Peak to Valley), qui est la différence entre les plus grands et les plus petits écarts à l'onde de référence. Cette grandeur s'écrit :

$$PV = \text{Max}[\delta(x, y)] - \text{Min}[\delta(x, y)] \quad (80)$$

- L'écart type,  $\sigma$ , qui rend compte de la dispersion des points de phase autour d'une valeur moyenne et s'écrit :



$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (\delta(x_i, y_i) - \langle \delta(x, y) \rangle)^2} \quad (81)$$

où  $N$  représente le nombre de points de phase.

Cette valeur, généralement assimilée à l'écart quadratique moyen ou encore RMS (Root Mean Square), est souvent plus significative que la valeur PV, dans la mesure où elle est moins sensible à des défauts locaux de la surface d'onde ou encore à des erreurs de mesure, qui apparaissent généralement en bord de pupille d'analyse.

## Annexe C : Publications

### **Demonstration of a spatial filtering amplifier for high-order harmonics**

J. Ph. Goddet, S. Sebban, A. S. Morlens, J. Gautier, J. Ph. Rousseau, F. Burgy, Ph. Zeitoun, C. Valentin, C. Hauri, G. Maynard, A. Boudaa, J. P. Caumes, H. Merdji, T. Mocek, M. Kozlova, and K. Jakubczak  
Optics Letters **32**, 1498-1500 (2007).

### **Aberration-free laser beam in the soft x-ray range**

J.Ph. Goddet, S. Sebban, J. Gautier, Ph. Zeitoun, C. Valentin, F. Tissandier, T. Marchenko, G. Lambert, M. Ribières and J. Nejd G Maynard, B. Cros, and B. Robillard T. Mocek, M. Kozlova, and K. Jakubczak  
Optics Letters **34**, 2438-2440 (2009)

### **Optimisation of the wave front of high order harmonics**

J. Gautier, P. Zeitoun, C. Hauri, A.-S. Morlens, G. Rey, C. Valentin, E. Papalarazou, J.-P. Goddet, S. Sebban, F. Burgy, P. Mercère, M. Idir, G. Dovillaire, X. Levecq, S. Bucourt, M. Fajardo, H. Merdji, and J.-P. Caumes,  
The European Physical Journal D **48**, 459–463 (2008)

### **High-order harmonic wave fronts generated with controlled astigmatic infrared laser**

Constance Valentin, Julien Gautier, Jean-Philippe Goddet, Christoph Hauri, Tatiana Marchenko, Evaggelos Papalazarou, Gilles Rey, Stéphane Sebban, Ophélie Scrick, Philippe Zeitoun, Guillaume Dovillaire, Xavier Levecq, Samuel Bucourt, and Marta Fajardo  
J. Opt. Soc. Am. **B** 161-166 (2008)

### **An optimized kHz two-colour high harmonic source for seeding free-electron lasers and plasma-based soft x-ray lasers**

G Lambert, J Gautier, C P Hauri, Ph Zeitoun, C Valentin, T Marchenko, F Tissandier, J Ph Goddet, M Ribiere, G Rey, M Fajardo and S Sebban  
New Journal of Physics, Vol. 11, Iss. 8, pg. 083033 (2009)



# Demonstration of a spatial filtering amplifier for high-order harmonics

J. Ph. Goddet,<sup>1,\*</sup> S. Sebban,<sup>1</sup> A. S. Morlens,<sup>1</sup> J. Gautier,<sup>1</sup> J. Ph. Rousseau,<sup>1</sup> F. Burgy,<sup>1</sup> Ph. Zeitoun,<sup>1</sup> C. Valentin,<sup>1</sup> C. Hauri,<sup>1</sup> G. Maynard,<sup>2</sup> A. Boudaa,<sup>2</sup> J. P. Caumes,<sup>3</sup> H. Merdji,<sup>3</sup> T. Mocek,<sup>4</sup> M. Kozlova,<sup>4</sup> and K. Jakubczak<sup>4</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire d'Optique Appliquée (LOA), ENSTA-École Polytechnique, Chemin de la Hunière, 91761 Palaiseau, France

<sup>2</sup>LPGP, Université Paris-Sud, 91405 Orsay, France

<sup>3</sup>CEA/SPAM, bâtiment 522, Centre d'Etudes de Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France

<sup>4</sup>Department of X-ray Lasers, Institute of Physics, Na Slovance 2, Prague 8 – 182 21, Czech Republic

\*Corresponding author: jean-philippe.goddet@ensta.fr

Received January 16, 2007; revised March 19, 2007; accepted March 20, 2007;  
posted April 2, 2007 (Doc. ID 79018); published May 4, 2007

We report what is to our knowledge the first demonstration of spatial filtering of a high-order harmonic beam into a soft-x-ray laser plasma amplifier at 32.8 nm. After amplification the seed energy is enhanced by a factor of 50, and the beam profile of the amplified beam exhibits an Airy-like shape due to the spatial filtering by the optical field ionized plasma. Moreover, the transverse coherence of the spatially filtered amplified beam is strongly enhanced, resulting in the generation of a peak coherent power of  $0.9 \times 10^5$  to  $1.8 \times 10^5$  W. © 2007 Optical Society of America  
OCIS codes: 140.7240, 300.6560.

Highly coherent soft-x-ray sources are required for many emerging applications such as high-resolution microscopy, lithography, interferometry, and holography. To this end, numerous efforts have been spent in the realization of tabletop laser-based coherent soft-x-ray sources. The most advanced sources are high-order harmonic generation (HHG) and soft-x-ray lasers (XRLs). HHG driven by coherent optical lasers exhibits high spatial coherence [1] with an average energy of a few hundreds of nanojoules at 30 nm [2,3]. Compared with HHG sources, XRLs offer much higher pulse energies and narrower linewidths [4]. However, to date XRLs have been characterized by rather low spatial coherence, since they operate by amplifying the incoherent spontaneous emission of radiation in a single pass through a plasma column. Spatial filtering of soft-x-ray radiation by using a small pinhole is a straightforward technique to improve the coherence of a source. This method is usually employed with synchrotron facilities, however, at the expense of the photon flux [5]. A similar technique has been demonstrated by using a double XRL target geometry [6].

Since the degree of spatial coherence plays a critical role in many applications, new approaches have to be investigated to produce high-energy, fully coherent, compact soft-x-ray beams. For this goal, seeding of a soft-x-ray amplifier with a HHG beam is a promising technique, combining a high degree of coherence with high output energy. This approach was proposed and tested in 1995 [7] and later demonstrated by using an optical field ionized plasma amplifier [8,9]. Very recently, saturated amplification of a HHG seed in a high-density plasma of a transient collisional XRL amplifier created by heating a solid target was demonstrated [10]. The authors predicted that the degree of spatial coherence would improve when

the amplifier is seeded; however, no direct comparison of the seed and amplified pulses has been performed yet.

In this Letter, we show for the first time to our knowledge that the transverse coherence of the seeded XRL beam is significantly improved and that the spatial profile is dramatically modified when the plasma amplifier can serve as a spatial filter. The experiment was performed at Laboratoire d'Optique Appliquée by using a 10 Hz multiterawatt Ti:sapphire laser system [11] providing two independent 34 fs laser beams at a central wavelength of 815 nm. One beam delivers  $\sim 575$  mJ on target and is used to create the XRL amplifier; the beam is focused by a 1 m focal length, on-axis spherical mirror to a spot diameter of  $38 \mu\text{m}$  (at  $1/e^2$ ) into a 7.5 mm long gas cell filled with Kr [12]. A second 13 mm diameter laser beam of about 10 mJ is focused in another 7 mm gas cell filled with 30 mbars of Ar, using an  $f=1.5$  m spherical lens. A grazing-incidence toroidal mirror is used to image the output of the HHG source with a magnification of 1.5 at the entrance of the amplifier cell. The HHG seed spot has been measured to be circular with a diameter of  $94 \pm 3 \mu\text{m}$  (at  $1/e^2$ ), which is much larger than the expected transverse dimension of the amplifier. Spatial coherence was measured by placing a pair of Young's slits into the x-ray beam  $\sim 70$  cm away from the plasma amplifier. Each slit was  $23 \mu\text{m}$  wide, and slit pairs with spacing of 115, 226, and  $323 \mu\text{m}$  were used for the measurements. The interference pattern and far field were measured by using a 16-bit CCD camera.

Recorded emission spectra clearly showed that strong amplification of the seed HHG beam has been achieved. In the experiment described here, HHG were seeded at about half of the expected saturation fluence of the amplifier ( $200 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ ), leading to an

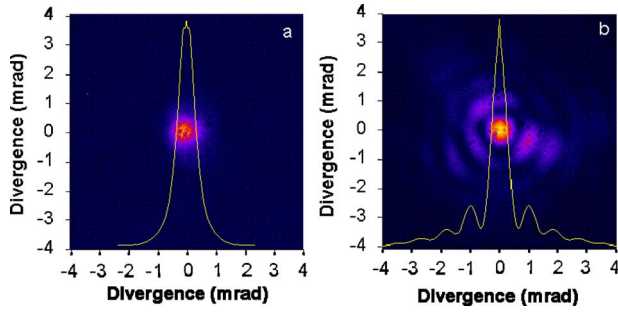


Fig. 1. (Color online) Far-field pattern of a, the seed HHG beam and b, the seeded XRL beam.

enhancement of the output signal by a factor of about 50. The amplification period started 2 ps after the interaction of the IR laser with the neutral gas and lasted for about 8 ps. Figure 1a displays a typical beam profile of the 32.8 nm HHG seed beam after passing through the cell of the amplifier with no gas. The seed beam has a nearly Gaussian profile with a divergence of 0.69 mrad at FWHM. Note that we have confirmed that the signal was not affected by the entrance and exit pinholes of the cell of the amplifier. By contrast, the spatial profile of the amplified seeded beam has dramatically changed (Fig. 1b). It exhibits an Airy-like shape intensity distribution, while the divergence is slightly smaller (0.54 mrad) than that of the input HHG beam. We have measured the radius  $R$  of the Airy disk, defined as the first zero-signal disk given by  $R = 1.22\lambda d/D$ , where  $\lambda$  is the wavelength and  $d$  is the distance between the source and the detector, and thus we inferred the diameter of the aperture  $D$ . Our data indicate that the 32.8 nm amplified radiation has passed through a spatial filtering aperture  $D$  of 65  $\mu\text{m}$ , which could correspond to the transverse dimension of the amplifier.

To confirm this assumption, we have calculated a 2D axis symmetry map of the local gain by using the

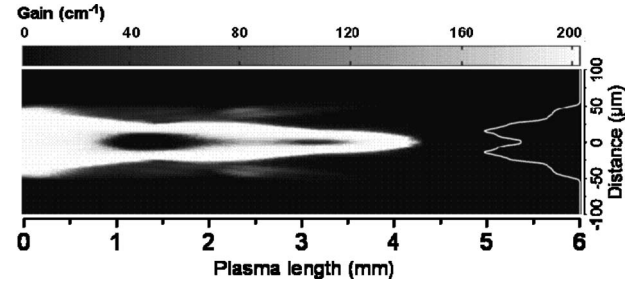


Fig. 2. Calculated 2D distribution of the maximum gain coefficient of the  $3d^94d\ ^1S_0-3d^94p\ P_1$  transition in Kr IX plasma. The laser emission travels from left to right.

numerical code COFIXE [13]. These calculations are performed in two steps: First the transport of the IR driving laser through the Kr gas is calculated within the paraxial approximation by using the experimental values for the laser and the gas parameters, and then a collisional-radiative atomic code is used to determine the evolution with time of the local gain. In Fig. 2 we report the 2D map of the maximum value  $g_{\text{max}}$  reached by the gain at each plasma position. In previous work [9] it was shown that, in the saturation regime, the amplification factor of the HHG is proportional to the integration of  $g_{\text{max}}$  over the beam direction. Therefore the map of the  $g_{\text{max}}$  values provides a good indication of the transverse dimension of the amplified XRL signal. A linear gray scale has been used in constructing Fig. 2; nevertheless, we can observe a sharp transition between the white and the black domains. This indicates that the amplifying domain has a rather uniform value of  $g_{\text{max}}$  (about 180  $\text{cm}^{-1}$ ), leading to a nearly constant amplifying factor up to a given diameter of about 60  $\mu\text{m}$ . The calculated transverse dimension of the amplifier, which is in reasonable agreement with the diameter  $D$  of the spatial filter inferred from Fig. 1b, confirms that the gain region of the plasma acts as an actual am-

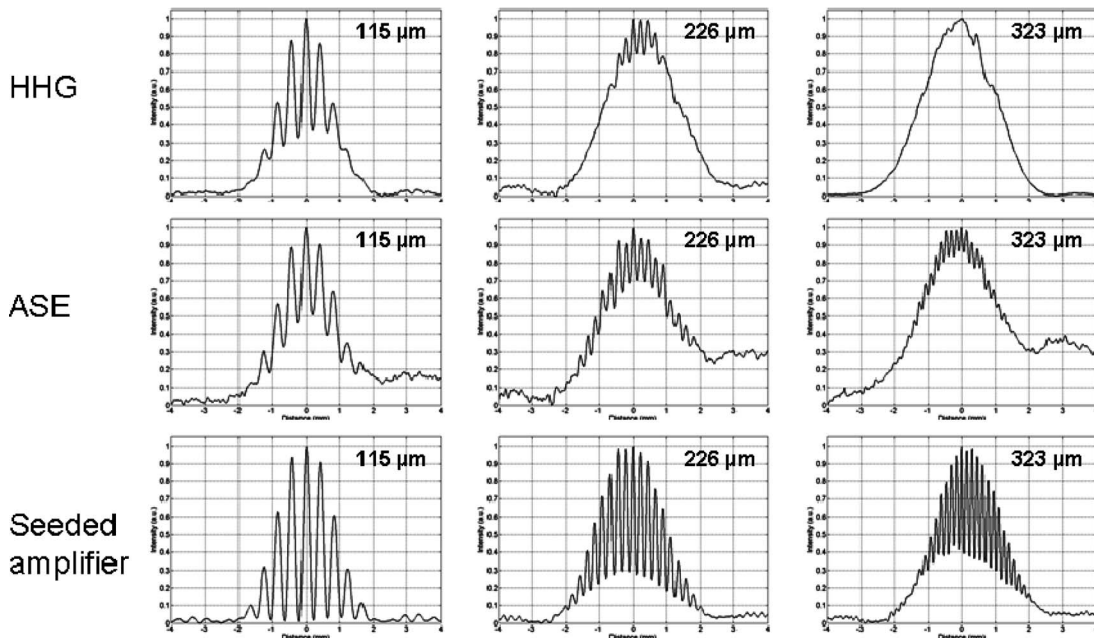


Fig. 3. Line out of the fringe pattern of (a) the HHG beam, (b) the ASE beam, and (c) the amplified seeded beam, for slit separations ranging from 115 to 323  $\mu\text{m}$ .

plifying diaphragm, providing spatial filtering of the seed. The total energy of the amplified 32.8 nm signal has been measured to be about 300 nJ.

Figure 3 shows typical intensity profile line outs of the interference patterns obtained for different slit separations ranging from 115 to 323  $\mu\text{m}$ . Figure 3 rows correspond to the seed HHG beam, the ASE emission, and the seeded beam as noted. Ten shots have been accumulated to obtain the interference signal. Despite the fact that the ASE beam size is much larger (about 12 mm) than the slit spacing, the measured fringe contrast never exceeded 45%. For the HHG seed beam, the observed contrast is relatively low as well, presumably because of the high intensity of the driving laser ( $10^{15}$  to  $2 \times 10^{15}$   $\text{W cm}^{-2}$ ) used to produce the HHG beam [14]. In striking contrast, row 3 of Fig. 3 shows very high-quality interference fringes. The fringe contrast drops from 95% for the 115  $\mu\text{m}$  slit spacing to 45% for a slit spacing as large as 323  $\mu\text{m}$ , showing that a dramatic improvement of the transverse coherence of the 32.8 nm radiation has been achieved after amplification.

More quantitative information can be inferred from Fig. 4, which displays the fringe visibility, defined as  $V = (I_{\text{max}} - I_{\text{min}}) / (I_{\text{max}} + I_{\text{min}})$ , where  $I_{\text{max}}$  and  $I_{\text{min}}$  are the maximum and minimum intensities of the fringe pattern, as a function of the slit separation for the seed HHG beam, the ASE beam, and the seeded beam. In the same graph the normalized complex degree of coherence  $|\mu_{12}|$  has been plotted for a Gaussian profile. Here we define the coherent radius  $R_c$  within which the fringe visibility is larger than 0.61. The coherent radius of the ASE emission is about 98  $\mu\text{m}$ , which is about 122 times smaller than the measured beam diameter. For the seed HHG beam we estimated a coherent radius of 102  $\mu\text{m}$ , which corresponds to about one quarter of the full beam diameter. For the seeded XRL beam, the coherent radius reached 232  $\mu\text{m}$ , which corresponds to about 60% of the central disk of the beam profile, clearly showing the beneficial effect of spatial filtering on the improvement of transverse coherence.

In summary, we have presented the first demonstration of spatial filtering of a HHG beam in the op-

tical field ionized soft-XRL plasma amplifier. The seed energy was boosted by a factor of 50 and resulted in an Airy-like shape beam profile. We found that the spatially filtered amplified beam exhibits a spatial coherence length that is more than twice that of the HHG seed beam. Assuming that the 32.2 nm laser pulse has a duration of 1–2 ps and an energy of 300 nJ and that 60% of the beam is transversally coherent results in a peak coherent power of  $0.9 \times 10^5$  to  $1.8 \times 10^5$  W. The availability of such a highly coherent, polarized, tabletop seeded XRL with high peak power and spectral brightness will open up new opportunities in science and technology.

This work was supported by the European Union via the Access to Large Scale Facilities Program, contract HPRI-1999-CT-00086, and partially by the Czech–French project BARRANDE 2-06-16.

## References

1. X. Zhang, A. R. Libertun, A. Paul, E. Gagnon, S. Backus, I. P. Christov, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, R. A. Bartels, Y. Liu, and D. T. Attwood, *Opt. Lett.* **29**, 1357 (2004).
2. E. Takahashi, Y. Nabekawa, T. Otsuka, M. Obara, and K. Midorikawa, *Phys. Rev. A* **66**, 021802 (2002).
3. J.-F. Hergott, M. Kovacev, H. Merdji, C. Hubert, Y. Mairesse, E. Jean, P. Breger, P. Agostini, B. Carré, and P. Salieres, *Phys. Rev. A* **66**, 021801 (2002).
4. H. Daido, *Rep. Prog. Phys.* **65**, 1513 (2002).
5. D. T. Attwood, *Soft X-Rays and Extreme Ultraviolet Radiation* (Cambridge U. Press, 1999).
6. M. Nishikino, M. Tanaka, K. Nagashima, M. Kishimoto, M. Kado, T. Kawachi, K. Suegawa, Y. Ochi, N. Hasegawa, and Y. Kato, *Phys. Rev. A* **68**, 061802 (2003).
7. T. Ditmire, M. H. R. Hutchinson, M. H. Key, C. L. S. Lewis, A. MacPhee, I. Mercer, D. Neely, M. D. Perry, R. A. Smith, J. S. Wark, and M. Zepf, *Phys. Rev. A* **51**, 0R4337 (1995).
8. Ph. Zeitoun, G. Faivre, S. Sebban, T. Mocek, A. Hallou, M. Fajardo, D. Aubert, Ph. Balcou, F. Burgy, D. Douillet, S. Kazamias, G. de Lacheze-Murel, T. Lefrou, S. le Pape, P. Mercere, H. Merdji, A. S. Morlens, J. P. Rousseau, and C. Valentin, *Nature* **431**, 466 (2004).
9. T. Mocek, S. Sebban, G. Maynard, Ph. Zeitoun, G. Faivre, A. Hallou, M. Fajardo, S. Kazamias, B. Cros, D. Aubert, G. de Lacheze-Murel, J. P. Rousseau, and J. Dubau, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 173902 (2005).
10. Y. Wang, E. Granados, M. A. Larotonda, M. Berrill, B. M. Luther, D. Patel, C. S. Menoni, and J. J. Rocca, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 123901 (2006).
11. M. Pittman, S. Ferré, J. P. Rousseau, L. Notebaert, J. P. Chambaret, and G. Chériaux, *Appl. Phys. B* **74**, 529 (2002).
12. S. Sebban, R. Haroutunian, Ph. Balcou, G. Grillon, A. Rousse, S. Kazamias, T. Marin, J. P. Rousseau, L. Notebaert, M. Pittman, J. P. Chambaret, A. Antonetti, D. Hulin, D. Ros, A. Klisnick, A. Carillon, P. Jaeglé, G. Jamelot, and J. F. Wyart, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 3004 (2001).
13. B. Cros, T. Mocek, I. Bettaibi, G. Vieux, M. Farinet, J. Dubau, S. Sebban, and G. Maynard, *Phys. Rev. A* **73**, 033801 (2006).
14. T. Ditmire, E. T. Gumbrell, R. A. Smith, J. W. G. Tisch, D. D. Meyerhofer, and M. H. R. Hutchinson, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 4756 (1996).

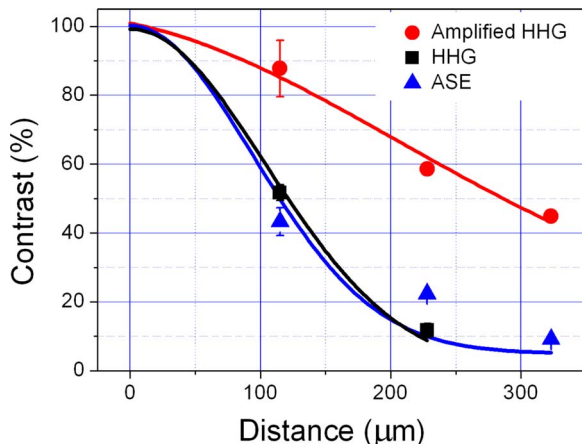


Fig. 4. (Color online) Measured fringe visibility of the HHG beam, the ASE emission, and the amplified seeded beam as a function of the slit separation.





# Aberration-free laser beam in the soft x-ray range

J. Ph. Goddet,<sup>1,\*</sup> S. Sebban,<sup>1</sup> J. Gautier,<sup>1</sup> Ph. Zeitoun,<sup>1</sup> C. Valentin,<sup>1</sup> F. Tissandier,<sup>1</sup> T. Marchenko,<sup>1</sup> G. Lambert,<sup>1</sup> M. Ribières,<sup>1</sup> D. Douillet,<sup>1</sup> T. Lefrou,<sup>1</sup> G. Iaquaniello,<sup>1</sup> F. Burgy,<sup>1</sup> G. Maynard,<sup>2</sup> B. Cros,<sup>2</sup> B. Robillard,<sup>2</sup> T. Mocek,<sup>3</sup> J. Nejd,<sup>3</sup> M. Kozlova,<sup>3</sup> and K. Jakubczak<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire d'Optique Appliquée (LOA), ENSTA-École Polytechnique, Chemin de la Hunière, 91761 Palaiseau, France

<sup>2</sup>Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas (LPGP), Bat 210, Université Paris-Sud 11, 91405 Orsay, France

<sup>3</sup>Department of X-Ray Lasers, Institute of Physics, Na Slovance 2, Prague 8—182 21, Czech Republic

\*Corresponding author: jean-philippe.goddet@ensta.fr

Received June 9, 2009; revised June 9, 2009; accepted June 18, 2009;  
posted July 2, 2009 (Doc. ID 106456); published August 7, 2009

By seeding an optical-field-ionized population-inverted plasma amplifier with the 25th harmonic of an IR laser, we have achieved what we believe to be the first aberration-free laser beam in the soft x-ray spectral range. This laser emits within a cone of 1.34 mrad ( $1/e^2$ ) at a repetition rate of 10 Hz at a central wavelength of 32.8 nm. The beam exhibits a circular profile and wavefront distortions as low as  $\lambda/17$ . A theoretical analysis of these results shows that this high beam quality is due to spatial filtering of the seed beam by the plasma amplifier aperture. © 2009 Optical Society of America

OCIS codes: 140.7240, 070.6110.

Until now, in all the soft x-ray laser (XRL) schemes operating at saturation, population inversion between the levels of the lasing ion is induced by electron collisional excitation, leading to high gain value at short wavelength [1]. The short lifetime of the gain and the absence of high reflectivity soft x-ray optics make the use of this soft XRL (SXRL) amplifier in a complete laser cavity impossible. For this reason, soft XRL emission generally results from the single-pass amplification of spontaneous emission. As a consequence, SXRL radiation is characterized by an inhomogeneous beam profile [2], a low spatial coherence [3], and important wavefront distortions [4], which limits the use of SXRL for applications that require a highly intense, coherent, soft x-ray photon flux in a submicrometer spot size. A promising solution to be explored consists in seeding a soft x-ray plasma amplifier with a high-order harmonic (HOH) seed beam. This emerging scheme [5–7], which offers a prospect for a compact SXRL chain, has recently permitted to achieve a fully spatially coherent SXRL beam understood to be the consequence of the spatial filtering of the HOH beam by the amplifying plasma [3]. Although an increase of the spatial coherence is important, the seeding technique should also permit to improve the beam wavefront. Surprisingly, despite its key role for applications, the wavefront of seeded SXRL (SSXRL) has not been investigated so far (to our knowledge). Earlier studies showed that neonlike Ar capillary discharge-driven laser at 46.9 nm exhibits its wavefront distortion of  $3 \times \lambda_{\text{XRL}}$ , which we believe is the only measurement performed for a plasma-based SXRL source [8].

In this Letter we report on the first observation of an aberration-free laser beam at 32.8 nm achieved by seeding an optical field ionized SXRL amplifier [9] with an HOH beam. The 32.8 nm SSXRL beam exhibits a circular energy distribution with a divergence of 0.67 mrad (half angular with at  $1/e^2$ ). Moreover, the wavefront distortions have been improved

from  $\lambda_{\text{XRL}}/3$  up to  $\lambda_{\text{XRL}}/17$  (1.9 nm) after amplification by the plasma column. Our numerical simulations, which are in a good agreement with experimental results, show that the properties of the measured wavefront of the SSXRL result from the coupling and spatial filtering of the seed beam into the amplifying plasma column.

The experiment was performed at the Laboratoire d'Optique Appliquée using a 10 Hz, multiterawatt Ti:sapphire laser system providing two independent 34 fs laser beams at a central wavelength of 815 nm [10]. The first IR laser beam, containing about up to 10 mJ, was focused ( $f=1.5$  m) inside a 7.5-mm-long gas cell filled with 30 mbar of Ar in order to generate the HOH beam. The 25th harmonic of the IR laser was closely matched to the wavelength of the lasing transition of the SXRL amplifier. A grazing incidence toroidal mirror imaged the output of the HOH source with a magnification of 1.5 at the entrance of the amplifier cell. The second IR beam was used to create the optical field ionized amplifying plasma column that drives the  $3d^9 4d (^1S_0) \rightarrow 3d^9 4p (^1P_1)$  transition of the  $\text{Kr}^{8+}$  ion at 32.8 nm [11]. The laser beam was circularly polarized and focused to a spot diameter of 38  $\mu\text{m}$  (at  $1/e^2$ ) inside a 7.5-mm-long gas cell filled with Kr. For these experimental conditions the largest amplification of the 25th-harmonic seed beam was about 180 times.

The wavefront of the SSXRL was measured with a soft x-ray Hartmann sensor [12]. In the Hartmann wavefront analysis a beam passes through a hole array and is projected onto a CCD camera that detects the beamlet sampled by each hole. The position of each individual spot centroid is measured and compared with a reference position obtained by filtering the HOH beam using a 10  $\mu\text{m}$  hole implemented after the HOH cell. This diagnostic permits to reconstruct the wavefront with a resolution of  $\lambda/20$  at 32.8 nm [13]. In the plane of the Hartmann detector,



the complex amplitude of the laser field can be written as

$$E_H(x, y, z = z_H) = \sqrt{I_{\text{SXRL}}(\theta_x, \theta_y)} \times \exp \left[ i \frac{\pi}{\lambda_{\text{SXRL}}} \left( \frac{x^2 + y^2}{z_H} + 2\delta(\theta_x, \theta_y) \right) \right]. \quad (1)$$

In this equation,  $z_H$  is the distance between the detector and the entrance of the plasma,  $\theta_x = x/z_H$  and  $\theta_y = y/z_H$  are the beam divergences in the two directions perpendicular to the beam axis,  $I_{\text{SXRL}}$  is the laser intensity as reported in Fig. 1,  $\delta(\theta_x, \theta_y)$  represents the fluctuation of the wavefront, and  $\delta(\theta_x, \theta_y) = 0$  corresponds to a fully coherent, diffraction limited beam. Figure 1(a) shows a typical example of the values of  $\delta(\theta_x, \theta_y)$  for the seed HOH beam after accumulating 100 shots. The HOH beam exhibits large phase fluctuations, with an average distortion of about  $0.3 \times \lambda_{\text{SXRL}}$  rms. Note that the HOH beam exhibits an oval shape (horizontal and vertical divergence of 1.32 mrad and 0.48 mrad, respectively) owing to the astigmatism introduced by a misalignment of the toroidal coupling mirror. The wavefront fluctuations in the case of the SSXRL beam are shown in Fig. 1(b), corresponding to the accumulation of five shots. In comparison with the HOH case [Fig. 1(a)], the beam shape is circular with a divergence of  $0.67 \pm 0.07$  mrad, and the amplitudes of the wavefront fluctuations of the SSXRL are much smaller, with an rms value of only  $0.058 \times \lambda_{\text{SXRL}}$ , which corresponds to less than  $\lambda/17$  (1.9 nm). According to the Marechal criterion [14], the generated SSXRL can be considered as a diffraction-limited beam, which has not yet been demonstrated.

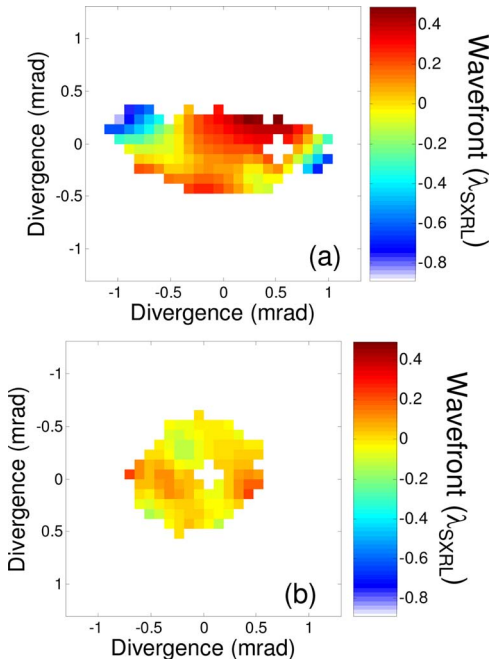


Fig. 1. (Color online) Measured wavefront of (a) the HOH beam, (b) the SSXRL beam at 32.8 nm.

As the intensity and the phase of the beams were measured using the Hartman sensor, the values of the complex amplitude of the electric field, Eq. (1), are known in the plane of the detector at each small hole position. Using a  $\chi^2$  minimization fit, these values are projected on a Hermit–Gauss basis [15] to make possible the reconstruction of the complex amplitude of either the HOH beam or the SSXRL one anywhere on the path of the beam. The results of this analysis are presented in Fig. 2. Figure 2(a) shows the HOH beam energy distribution reconstructed at the entrance of the amplifying plasma column, which is found to be oval with dimensions of  $55 \times 116 \mu\text{m}^2$  (at  $1/e^2$ ). The SSXRL energy distribution at the exit of the plasma is shown in Fig. 2(b). It has a more-symmetrical shape with a surface of  $58 \times 77 \mu\text{m}^2$  (at  $1/e^2$ ).

To analyze the importance of spatial filtering in the reduction of the wavefront distortions, we used a simplified model in which the plasma is assumed to be a cylinder of length  $L = 7.5$  mm and of radius  $R$ . The value for the Rayleigh length of the HOH beam is 1 order of magnitude larger than  $L$ , so diffraction effect inside the plasma can be safely neglected. Therefore the complex amplitude for the SSXRL, at the exit of the plasma, takes the simple form

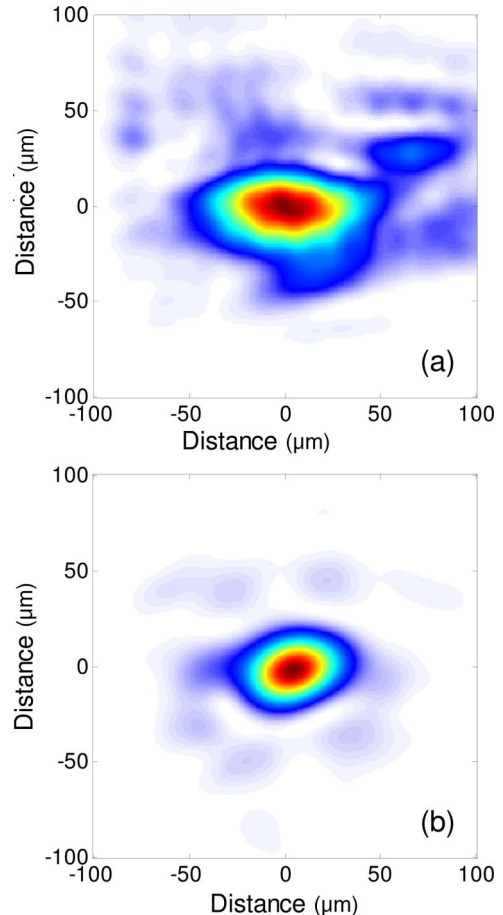


Fig. 2. (Color online) (a) Reconstructed profile of the HOH beam at the entrance of the amplifying plasma, (b) reconstructed source size of the SSXRL beam.

$$E_{\text{SSXRL}}(x, y, z = L) = \sqrt{G} E_H(x, y, z = 0) H(R - \sqrt{x^2 + y^2}), \quad (2)$$

where  $G$  is the amplifying factor,  $H(u)$  is the Heaviside step function, and  $E_H$  is the complex amplitude defined in Eq. (1) for the HOH beam case. In Eq. (2), owing to the large value of  $G$  and also to absorption by nonionized gas, the amplitude of the field outside the plasma has been set to zero. We see from Eq. (2) that, besides a constant factor, the influence of the plasma amplifier on the HOH beam is identical to the effect of a circular diaphragm.

$E_{\text{SSXRL}}(x, y, z = L)$ , which is the complex amplitude of the SXRL field at the exit of the amplifying column, is determined from Eq. (2) and projected again on the Hermit–Gauss basis, in order to determine the complex amplitude of  $E_{\text{SSXRL}}(x, y, z = z_H)$ , after propagation, in the plane of the Hartmann detector. These calculations were performed for a plasma radius ranging from 15  $\mu\text{m}$  up to 1000  $\mu\text{m}$ . The variation of wavefront distortion as a function of the plasma radius is plotted in Fig. 3. It shows that for our experimental conditions, the wavefront distortions of the SSXRL beam are significantly reduced for a plasma radius smaller than 60  $\mu\text{m}$  and that the diffraction limit ( $\lambda/14$ ) is reached when the amplifying plasma radius is smaller than 37  $\mu\text{m}$ . According to these calculations, our measurements of the wavefront suggest that the HOH beam was filtered by a  $\sim 30$   $\mu\text{m}$  radius plasma column; this value is in good agreement with the calculated dimensions of the plasma amplifier [3].

In conclusion, by seeding a laser-created plasma amplifier we have demonstrated that it is possible to generate an intense soft x-ray beam having all the spatial properties of common visible/IR/UV lasers. Our measurements suggest that thanks to the near-

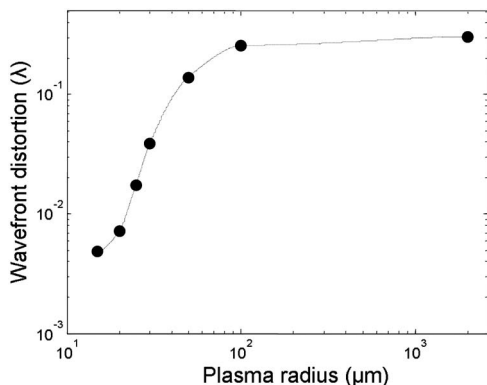


Fig. 3. Calculated wavefront distortions of the SSXRL beam as a function of the radius of the amplifying plasma column.

perfect wavefront it should be possible to focus a microjoule SSXRL beam into a near 0.1  $\mu\text{m}$  diameter spot and thus achieve a soft x-ray intensity close to  $10^{14}$ – $10^{15}$   $\text{W cm}^{-2}$ . The excellent spatial beam quality, coupled to a high longitudinal coherence, makes this source an excellent scientific tool for applications such as soft x-ray holography, phase-contrast imaging, and microscopy.

The authors acknowledge invaluable technical assistance from the laser support staff at Laboratoire d'Optique Appliquée–ENSTA. This work was supported by the Agence National pour la Recherche under the program COKER, contract number ANR-06-BLAN-0123.

## References

1. H. Daido, Rep. Prog. Phys. **65**, 1513 (2002).
2. S. Sebban, L. M. Upcraft, Ph. Balcou, M. Pittman, R. Haroutunian, G. Grillon, C. Valentin, A. Rousse, J. Ph. Rousseau, L. Notebaert, D. Hulin, T. Mocek, B. Rus, D. Ros, A. Klisnick, A. Carillon, and G. Jamelot, J. Opt. Soc. Am. B **80**, 195 (2003).
3. J. Ph. Goddet, S. Sebban, A. S. Morlens, J. Gautier, J. Ph. Rousseau, F. Burgy, Ph. Zeitoun, C. Valentin, C. Hauri, G. Maynard, A. Boudaa, J. P. Caumes, H. Merdji, T. Mocek, M. Kozlova, and K. Jakubczak, Opt. Lett. **32**, 1498 (2007).
4. J. J. Rocca, V. N. Shlyaptsev, F. G. Tomasel, O. D. Cortázar, H. Hartshorn, and J. L. Chilla, Phys. Rev. Lett. **73**, 2192 (1994).
5. Ph. Zeitoun, G. Faivre, S. Sebban, T. Mocek, A. Hallou, M. Fajardo, D. Aubert, Ph. Balcou, F. Burgy, D. Douillet, S. Kazamias, G. De Lachèze-Murel, T. Lefrou, S. Le Pape, P. Mercère, H. Merdji, A. S. Morlens, J. P. Rousseau, and C. Valentin, Nature **431**, 466 (2004).
6. Y. Wang, E. Granados, M. A. Larotonda, M. Berrill, B. M. Luther, D. Patel, C. S. Menoni, and J. J. Rocca, Phys. Rev. Lett. **97**, 123901 (2006).
7. Y. Wang, E. Granados, F. Pedaci, D. Alessi, B. Luther, M. Berrill, and J. J. Rocca, Nat. Photonics **2**, 94 (2008).
8. S. Le Pape, Ph. Zeitoun, M. Idir, P. Dhez, J. J. Rocca, and M. François, Phys. Rev. Lett. **88**, 183901 (2002).
9. B. E. Lemoff, C. P. J. Barty, and S. E. Harris, Opt. Lett. **19**, 569 (1994).
10. M. Pittman, S. Ferré, J. P. Rousseau, L. Notebaert, J. P. Chambaret, and G. Chériaux, Appl. Phys. B **74**, 529 (2002).
11. S. Sebban, T. Mocek, D. Ros, L. Upcraft, Ph. Balcou, R. Haroutunian, G. Grillon, B. Rus, A. Klisnick, A. Carillon, G. Jamelot, C. Valentin, A. Rousse, J. P. Rousseau, L. Notebaert, M. Pittman, and D. Hulin, Phys. Rev. Lett. **89**, 253901 (2002).
12. P. Mercere, P. Zeitoun, M. Idir, S. Le Pape, D. Douillet, X. Ilevicq, G. Dovillaire, S. Bucourt, K. A. Goldberg, P. P. Naulleau, and S. Rekawa, Opt. Lett. **28**, 1534 (2003).
13. W. H. Southwell, J. Opt. Soc. Am. **70**, 998 (1980).
14. A. Marechal, Rev. D'Optique **26**, 257 (1947).
15. A. E. Siegman, *Lasers* (University Science Books, 1986).



## Optimization of the wave front of high order harmonics

J. Gautier<sup>1,a</sup>, P. Zeitoun<sup>1</sup>, C. Hauri<sup>1</sup>, A.-S. Morlens<sup>1</sup>, G. Rey<sup>1</sup>, C. Valentin<sup>1</sup>, E. Papalarazou<sup>1</sup>, J.-P. Goddet<sup>1</sup>, S. Sebban<sup>1</sup>, F. Burgy<sup>1</sup>, P. Mercère<sup>2</sup>, M. Idir<sup>2</sup>, G. Dovillaire<sup>3</sup>, X. Levecq<sup>3</sup>, S. Bucourt<sup>3</sup>, M. Fajardo<sup>4</sup>, H. Merdji<sup>5</sup>, and J.-P. Caumes<sup>5</sup>

<sup>1</sup> Laboratoire d'Optique Appliquée, École Nationale Supérieure de Technique Avancées, École Polytechnique, CNRS UMR7639, Chemin de la Hunière, 91761 Palaiseau Cedex, France

<sup>2</sup> Synchrotron SOLEIL, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex, France

<sup>3</sup> Imagine Optic, 18 rue Charles de Gaulle, 91400 Orsay, France

<sup>4</sup> Instituto de Plasmas e Fusão Nuclear, Instituto Superior Técnico, Av. Rovisco Pais, 1049-001 Lisboa, Portugal

<sup>5</sup> Commissariat à l'Énergie Atomique, Service des Photons, Atomes et Molécules, Bâtiment 522, Centre d'Étude de Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France

Received 15 January 2008 / Received in final form 17 March 2008

Published online 18 June 2008 – © EDP Sciences, Società Italiana di Fisica, Springer-Verlag 2008

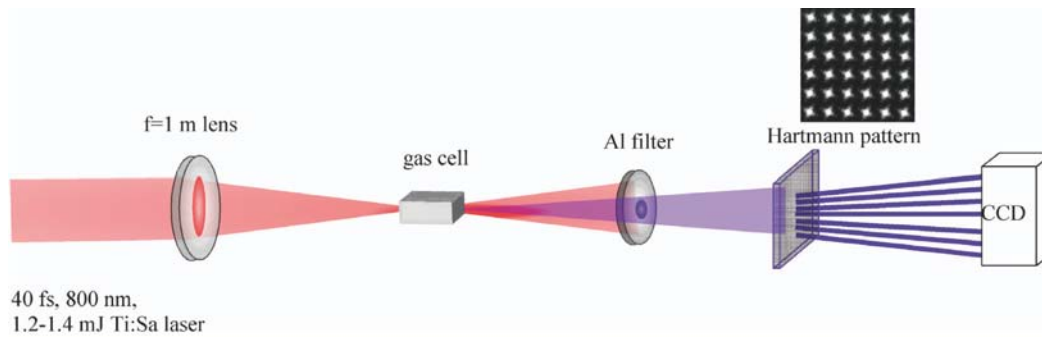
**Abstract.** We present a full optimization of the high harmonics wave front owing to the use of a soft X-ray Hartmann sensor. The sensor was calibrated using a high harmonic source with an accuracy of  $\lambda/50$  root-mean-square (rms) with  $\lambda$  around 30 nm. We observed a high harmonic wave front of  $\lambda/7$  rms, which is two times the diffraction-limit, astigmatism being the dominant aberration for every condition of generation. By clipping slightly the unfocused high harmonic beam, it is possible to produce a diffraction-limited beam containing approximately 90% of the incident energy.

**PACS.** 42.15.Dp Wave fronts and ray tracing – 07.85.Fv X- and gamma-ray sources, mirrors, gratings, and detectors

The High order Harmonics generated (HHG) by highly nonlinear interaction between atoms in a gas and an intense laser pulse provide an efficient source of soft X-ray radiation. High harmonic sources have high brightness [1], ultra-short pulse duration [2] and a high degree of spatial coherence [3]. Numerous applications have been achieved so far reaping the benefits of the unique properties of the HHG beam, such as its attosecond duration for following the ultra-fast dynamics of electrons, atoms or molecules [4] or its coherence for phase imaging, for example soft X-ray interferometry [5] or holography [6,7]. Since every phase-imaging experiment uses a reference wave, the wave front of the HHG beam must be of high optical quality, ideally diffraction-limited (DL), in order to record a distortion-free image. The wave front is defined as the surface of isophase of an electromagnetic wave. The possibility of combining the femtosecond down to attosecond pulse duration with the phase imaging would open up an even wider field of applications via single shot experiments [8]. Although high harmonics present excellent spatial and temporal properties, their peak flux is too low for single shot experiments. Nevertheless, this limitation can be overcome by seeding the HHG beam in a laser plasma amplifier [9] or in a free-electron laser [10] resulting in a dramatic increase of the beam intensity. In these config-

urations, the HHG wave front will largely determine the optical quality of the seeded soft X-ray laser achieved after amplification. For seeding or for phase-imaging experiments, the key parameter is the energy contained in the diffraction-limited portion of the beam. The Marechal's criterion [11] stands that a beam is diffraction-limited at a given wavelength,  $\lambda$ , when the aberrant wave front amplitude is lower than  $\lambda/14$  root-mean-square (rms). To the authors' knowledge, high harmonics wave front has been measured only once using a point-diffraction interferometry method [12], but without any optimization of the harmonic generation process. Furthermore, in the study reported in reference [12] the experimental error was approximately  $\lambda/15$  rms, too close to the Marechal's criterion for ensuring accurate measurement of the high harmonic wave front. A much higher degree of accuracy, as high as  $\lambda/120$  rms at 13 nm, has since been demonstrated using soft X-ray wave front sensors based on the so-called Hartmann technique [13]. In this letter we present a full study of the high harmonic wave front for different generation conditions and their optimization owing to the use of a soft X-ray Hartman wave front sensor based on the system originally developed by Mercère et al. [13]. In Hartmann wave-front analysis a beam passes through a hole-array and is projected onto a charge coupled device (CCD) camera that detects the beamlet sampled by

<sup>a</sup> e-mail: [julien.gautier@ensta.fr](mailto:julien.gautier@ensta.fr)



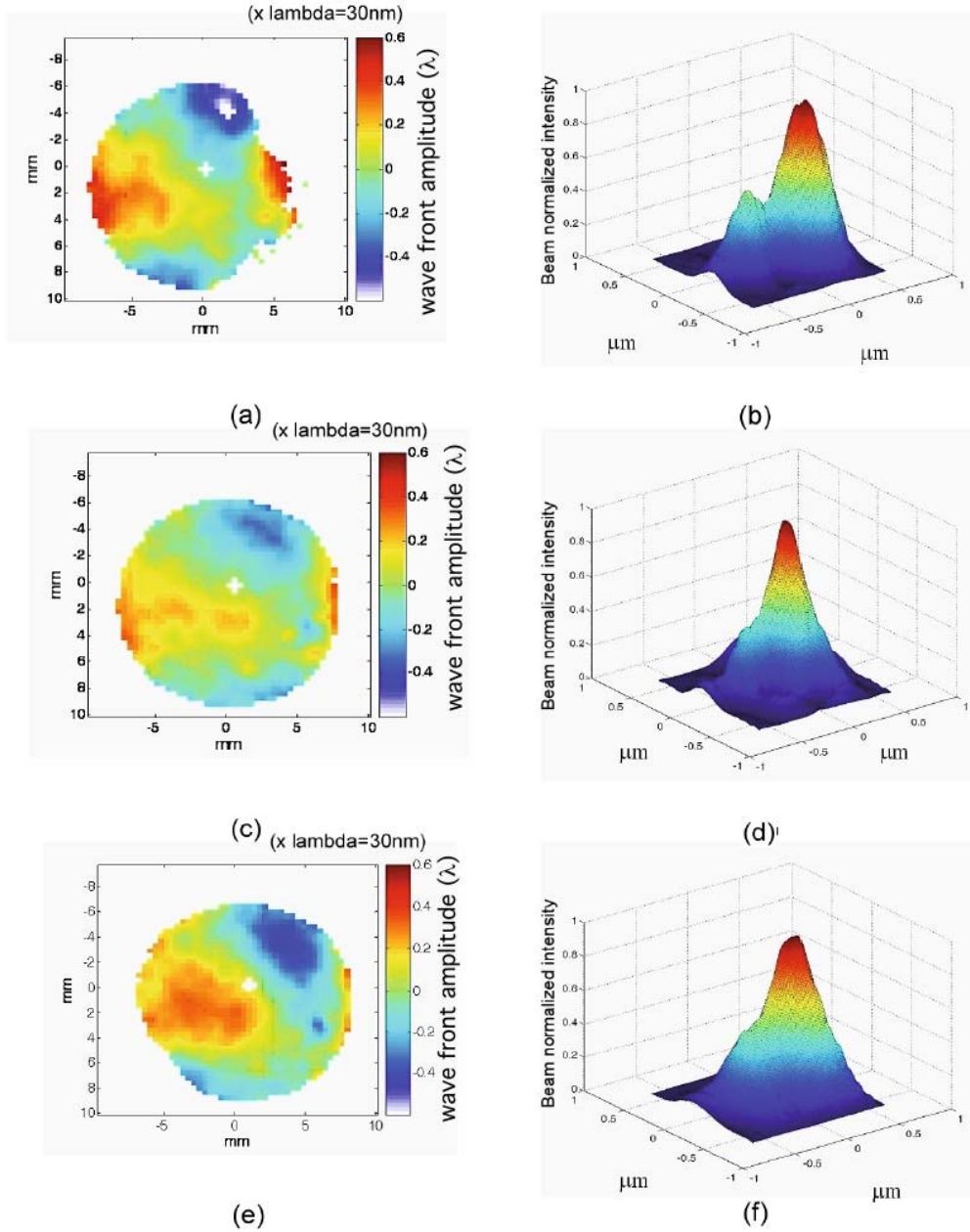
**Fig. 1.** (Color online) Schematic of the experimental set-up showing the diaphragm, the lens, and the gas cell.

each hole. The positions of the individual spot centroids are measured and compared with reference positions. This enables the wave front's local slope to be measured at a large number of points within the beam, from which the wave front can be reconstructed. Since the sensor is achromatic we measured the wave front of a polychromatic beam (i.e. a wave containing 4 consecutive harmonics). In the Fourier limit this beam contains a train of 300 attosecond pulses [14]. Optical quality of such a wave has never been studied although most of the attosecond related experiments require tight focusing of the attosecond beam and therefore a high-quality wave front. Previous measurements have shown negligible variation of the spatial coherence between five consecutive harmonics, when generated below the ionization threshold [15]. Since our experiment has been conducted in such conditions, we may assume also a weak modification of the wave front over the four harmonics of interest here ( $\lambda = 28$  nm to  $\lambda = 41$  nm). We optimized the energy contained in the diffraction-limited beam for different generation conditions.

The experiment set-up is shown in Figure 1. The high harmonics are generated by focusing a Ti:Sa femtosecond laser (1 kHz, 800 nm, 6 mJ, 40 fs) with a  $f = 1$  m lens in an argon gas cell. The parameters of the gas cell (length of 8 mm and gas pressure from 20 to 60 mbar), of the infrared beam (energy from 1.2 to 1.4 mJ) and of the focusing lens (position) were initially adjusted such as to optimize the HHG flux around  $\lambda = 32$  nm and to select short quantum trajectories which present a better intensity profile [16]. The XUV beam was constituted of four consecutive harmonics ( $\lambda = 28$  nm to  $\lambda = 41$  nm). A 300 nm thin aluminium filter has been used to block the infrared beam. The soft X-ray Hartmann sensor was made of a 100  $\mu$ m thick, nickel plate placed at about 20 cm in front of a CCD. The plate is constituted of  $51 \times 51$  square holes, 80  $\mu$ m in size each, and separated by 380  $\mu$ m over a  $19 \times 19$  mm<sup>2</sup> area. The projected spot pattern was recorded on a cooled, back-illuminated CCD having  $2048 \times 2048$  pixels operating at  $-40$  °C. The pixel size was  $13.5 \times 13.5$   $\mu$ m<sup>2</sup>. The sensor calibration has been done in the same way as in reference 13 by using the beam diffracted by a 10  $\mu$ m pinhole placed on the path from the HHG beam to the detector at 1 m from the gas cell output. Since the distances from the pinhole to the sensor and HHG source-sensor are different, the dominant aberration of the wave front is spherical aberration,

that has no effect on the intensity distribution at the focal plane. Therefore this aberration is always removed in the data displayed below. The data are displayed in terms of wavelength. For example, an aberration of  $\lambda$  in amplitude corresponds to local phase aberration of  $2\pi$ . We experimentally measured the sensor accuracy to be  $\lambda/50$  rms with  $\lambda = 32$  nm, i.e. an accuracy of 0.64 nm rms. This sensor is more accurate (by a factor of 3) than the system used for measuring the wave front in the experiment described in Lee et al. [12]. With such a high accuracy sensor being well adapted to our purpose of generating intense diffraction-limited beam, we then conducted a full study of the HHG wave front evolution versus the generation parameters. Figure 2 presents the absolute wave front measurement of a high harmonic beam generated in an 8 mm length gas cell and for three different gas pressures from 20 to 60 mbar. The highest HHG signal has been achieved with a diaphragm opened at 18 mm (transmitted energy of about 1.8 mJ) and an argon pressure of 60 mbar. Note that with our purpose to later seed a soft X-ray amplifier or to conduct phase imaging we could not compromise too much on the HHG flux for a better wave front. Therefore, all the measurements have been undertaken with generation parameters ensuring a HHG flux above 1/100th of the highest signal (safety range). The acquisition time was 1 second for the diaphragm opened at 18 mm (1000 shots) and 5 s for a 16 mm diameter diaphragm (5000 shots). The optimum wave front occurs around  $0.15\lambda \pm 0.02$  rms ( $\lambda/7$ ) for the entire calibrated pupil. We observed for every measurement that astigmatism was the principal aberration. Since astigmatism is a low order aberration and is static, the averaging that may occur during the wave front recording over 1000 shots might be realistically considered as negligible. This assumption is reinforced by the wave front measurement performed for the IR laser (Fig. 3a) also exhibiting a strong astigmatism, reproduced at the identical on every shot. It is realistic to consider that the IR laser wave front imprints the HHG wave front. However, it was surprising to observe that the IR wave front having aberrations of about 88 nm rms generated aberrations for the HHG beam around only 4.8 nm rms. One possibility is that the highly non-linear process of high-harmonic generation prevents the high harmonic emission from the most aberrant part of the IR beam because it did not contribute to the main focal spot (cf. Fig. 3b).

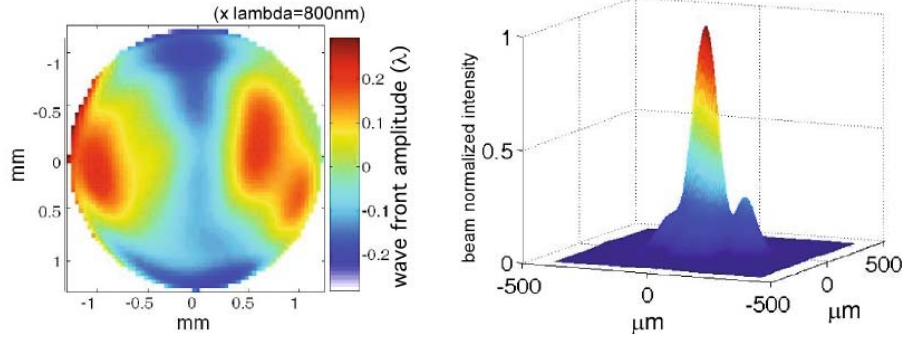




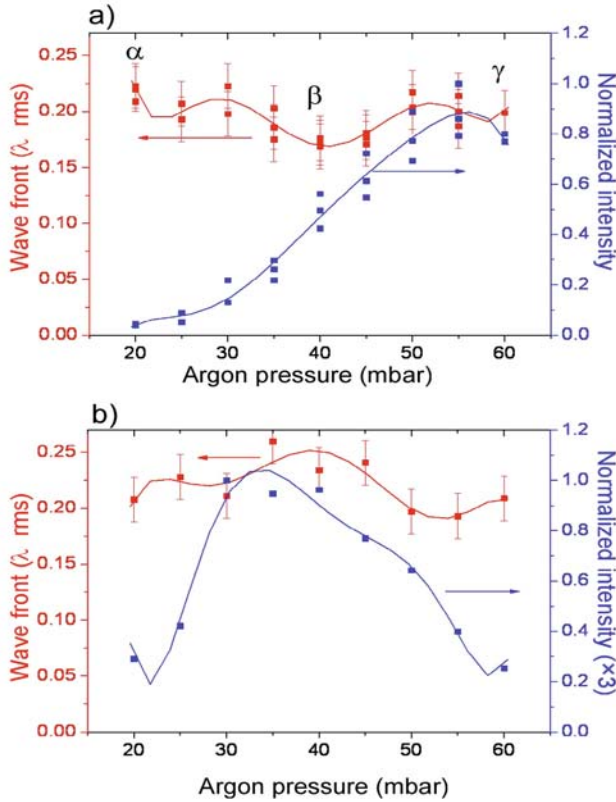
**Fig. 2.** (Color online) Maps of the wave fronts measured for a 18 mm diaphragm and Ar pressure of 25 (a), 40 (c), 60 (e) mbar. The false color map is displayed in term of wavelength at 32 nm. The focal spots calculated using a perfect  $f = 65$  mm spherical mirror in combination with both the measured wave front and the intensity maps (not displayed) are shown in Figures 2b, 2d and 2f for pressures 25, 40 and 60 mbar respectively.

Consistent with Lee et al. [12], we observed that the wave front is better at the pupil center than at the outermost part. We conducted a study on two issues. First, the influence of the harmonic generation parameters (gas pressure, diaphragm aperture, infrared pulse duration) onto the full beam wave front was measured. Second, for each case, based on this first data, we measured the energy contained in the diffraction-limited sub-aperture. In Figure 4 the variation of the wave front (full aperture) versus

argon pressure in the cell and for two different diaphragm apertures (18 and 16 mm) is shown. Although we expected the larger HHG beam to have a wave front of lower quality due to the propagation of the IR laser aberrations, nearly no improvement of the wave front was observed for the smallest IR beam. Moreover using a 16 mm diaphragm, the HHG flux is between 10 times, for  $P = 35$  mbar, to 100 times, for  $P = 20$  or 60 mbar, below the peak flux achieved for a diaphragm opened at 18 mm. We thus



**Fig. 3.** (Color online) (a) False color map of the IR beam wave front recorded on a single shot. The IR beam wave front was reproducible throughout the full experiment. (b) IR focal spot calculated by combining both the measured wave front and the intensity maps (not displayed).



**Fig. 4.** (Color online) Variation of high harmonics wave front and normalized intensity versus argon pressure for two diaphragm apertures: (a) 18 mm and (b) 16 mm. The lines are used only for guiding the eye. Three conditions, denoted  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ , of particular interest have been marked to aid the reader in following the discussion. Cases  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  correspond to the lowest HHG flux, to the best wave front, to the highest HHG flux respectively.

concentrated our study on the measurements performed with the 18 mm diaphragm. In this condition, we observed that the HHG flux increases with the gas pressure and slightly decreases near 65 mbar. For three characteristic cases ( $\alpha$ : lowest flux,  $P = 25$  mbar,  $\beta$ : best wave front,  $P = 40$  mbar,  $\gamma$ : highest flux,  $P = 60$  mbar), we used the

measured intensity and wave front maps to estimate the energy repartition at the focal plane of perfect focusing optics with  $f = 65$  mm focal distance. For case  $\alpha$ , the focal spot exhibits two peaks with a full width half-maximum (FWHM) of  $0.4 \times 0.4 \mu\text{m}^2$  rising to  $0.5 \times 0.9 \mu\text{m}^2$  at  $1/e^2$ . The energy contained in the DL beam is the 45% of the total beam energy. A clear improvement is observable on case  $\beta$  where the focal spot sizes are  $0.4 \times 0.7 \mu\text{m}^2$  at  $1/e^2$ , with an energy contained in the DL part of about 70% of the beam. Case  $\gamma$  is also an interesting adjustment since the focal spot is slightly wider ( $0.4 \times 0.4 \mu\text{m}^2$  FWHM and  $0.6 \times 0.8 \mu\text{m}^2$  at  $1/e^2$ ) than case  $\beta$  but the DL portion contains 90% of the beam energy. The beam dimensions at  $1/e^2$  are a bit larger for case  $\gamma$  than for case  $\beta$ , despite a better wave front, because the beam is 1.3 times smaller. An important consequence is that spatial filtering might be done by clipping 10% in surface the unfocused HHG beam in order to produce an intense DL beam as required for phase imaging or for seeding a soft X-ray amplifier. The DL beam achieved in these conditions has energy of approximately 1 nJ/pulse on target, average power of 1  $\mu\text{W}$ , and peak intensity at focus near  $10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  at 30 nm assuming a harmonic duration of around 10 fs.

In summary, we have used a soft X-ray sensor with  $\lambda/50$  rms accuracy to measure high harmonics wave fronts for different conditions of generation. A best wave front of  $0.15\lambda$  has been measured. This value does not change dramatically with the generation parameters. To satisfy the Marechal's criterion, the pupil size has to be slightly reduced but still retains the beam energy of 90% of the highest energy achieved during this experiment. This wave front is of a high quality, suitable for use in phase imaging or in seeding. Nevertheless astigmatism is always present, and seems to be correlated with astigmatism also measured on the infrared beam. Surprisingly, we observed a much lower level of astigmatism for HHG beam (4.8 nm rms) compared to the IR beam (88 nm) that could be due to the high non-linearity of high harmonic emission process. Further studies of correlation between infrared and high harmonics wave fronts are under consideration, considering phase-matching of high harmonics in the gas cell.

Financial support for this work was provided by the TUIXS European project (Table Top Ultra-intense XUV Sources) FP6 NEST-Adventure N° 012843.

## References

1. R. Ganeev, M. Suzuki, M. Baba, H. Kuroda, T. Ozaki, *Opt. Lett.* **31**, 1699 (2006); H.T. Kim, I.J. Kim, V. Tosa, Y.S. Lee, C.H. Nam, *Appl. Phys. B* **78**, 863 (2004)
2. S. Sansone, E. Benedetti, F. Calegari, C. Vozzi, L. Avaldi, R. Flammini, L. Poletto, P. Villoresi, C. Altucci, R. Velotta, S. Stagira, S. De Silvestri, M. Nisoli, *Science* **314**, 443 (2006)
3. L. Le Déroff, P. Salières, B. Carre, D. Joyeux, D. Phalippou, *Phys. Rev. A* **61**, 043802 (2000)
4. T. Remetter, P. Johnson, J. Mauritsson, K. Varju, Y. Ni, F. Lépine, S. Gustafsson, M. Kling, J. Kahn, R. Lopez-Martens, K.J. Schaffer, M.J.J. Vrakking, A. l'Huillier, *Nat. Phys.* **2**, 323 (2006)
5. J. Filevich, J.J. Rocca, M.C. Marconi, R.F. Smith, J. Dunn, R. Keenan, J.R. Hunter, S.J. Moon, J. Nilsen, A. Ng, V.N. Schlyaptsev, *Appl. Opt.* **43**, 3398 (2004)
6. A.S. Morlens, J. Gautier, G. Rey, P. Zeitoun, J.P. Caumes, M. Kos-Rosset, H. Merdji, S. Kazamias, K. Cassou, M. Fajardo, *Opt. Lett.* **31**, 3095 (2006)
7. R.A. Bartels, A. Paul, H. Green, H.C. Kapteyn, M.M. Murnane, S. Backus, I.P. Chichkov, Y. Liu, D. Attwood, C. Jacobson, *Science* **297**, 376 (2002)
8. H.N. Chapman, A. Barty, M.J. Bogan, S. Boutet, M. Frank, S.P. Hau-Riege, S. Marchesini, B.W. Woods, S. Bajt, W.H. Benner, R.A. London, E. Plönjes, M. Kuhlmann, R. Treusch, S. Düsterer, T. Tschentscher, J.R. Schneider, E. Spiller, T. Möller, C. Bostedt, M. Hoener, D.A. Shapiro, K.O. Hodgson, D. van der Spoel, F. Burmeister, M. Bergh, C. Caleman, G. Huldt, M.M. Seibert, F.R.N.C. Maia, R.W. Lee, A. Szöke, N. Timneanu, J. Hajdu, *Nat. Phys.* **12**, 839 (2006)
9. P. Zeitoun, G. Faivre, S. Sebban, T. Mocek, A. Hullou, M. Fajardo, D. Aubert, P. Balcou, F. Burgy, D. Douillet, S. Kazamias, G. de Lachèze-Murel, T. Lefrou, S. le Pape, P. Mercère, H. Merdji, A.S. Morlens, J.P. Rousseau, C. Valentin, *Nature* **431**, 426 (2004)
10. G. Lambert, T. Hara, D. Garzella, T. Tanikawa, M. Labat, B. Carré, H. Kitamura, T. Shintake, M. Bougeard, S. Inoue, Y. Tanaka, P. Salières, H. Merdji, O. Chubar, O. Gobert, K. Tahara, M.E. Couprie, *Nat. Phys.* **4**, 296 (2008)
11. J.W. Goodman, *Introduction to Fourier optics*, 3rd edn. (Roberts & Company, Publishers, Englewood, CO, 2005), p. 491
12. D.G. Lee, J.J. Park, J.H. Sung, C.H. Nam, *Opt. Lett.* **28**, 480 (2003)
13. P. Mercère, P. Zeitoun, M. Idir, S. Le Pape, D. Douillet, X. Levecq, G. Dovillaire, S. Bucourt, K.A. Goldberg, P.P. Naulleau, S. Rekawa, *Opt. Lett.* **28**, 1534 (2003)
14. A.S. Morlens, R. Lopez-Martens, O. Boyko, Ph. Zeitoun, P. Balcou, K. Varju, E. Gustafsson, T. Remetter, A. l'Huillier, S. Kazamias, J. Gautier, F. Delmotte, M.F. Ravet, *Opt. Lett.* **31**, 1558 (2006)
15. T. Ditmire, E.T. Gumbrel, R.A. Smith, J.W.G. Tisch, D.D. Meyerhofer, M.H.R. Hutchinson, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 4756 (1996)
16. P. Salières, A. L'Huillier, M. Lewenstein, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3776 (1995)





# High-order harmonic wave fronts generated with controlled astigmatic infrared laser

Constance Valentin,<sup>1,\*</sup> Julien Gautier,<sup>1</sup> Jean-Philippe Goddet,<sup>1</sup> Christoph Hauri,<sup>1,4</sup> Tatiana Marchenko,<sup>1</sup> Evaggelos Papalazarou,<sup>1</sup> Gilles Rey,<sup>1</sup> Stéphane Sebban,<sup>1</sup> Ophélie Scrick,<sup>1</sup> Philippe Zeitoun,<sup>1</sup> Guillaume Dovillaire,<sup>2</sup> Xavier Levecq,<sup>2</sup> Samuel Bucourt,<sup>2</sup> and Marta Fajardo<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire d'Optique Appliquée, UMR 7639 CNRS-ENSTA-Ecole Polytechnique, Chemin de la Hunière, F91 761 Palaiseau Cedex, France

<sup>2</sup>Imagine Optic, 18 rue Charles de Gaulle, 91400 Orsay France

<sup>3</sup>Instituto Superior Técnico, Av. Rovisco Pais, 1049-001 Lisboa, Portugal

<sup>4</sup>Present address: Paul Scherrer Institute, 5232 Villigen PSI, Switzerland

\*Corresponding author: [constance.valentin@ensta.fr](mailto:constance.valentin@ensta.fr)

Received November 30, 2007; revised May 26, 2008; accepted May 27, 2008;  
posted June 11, 2008 (Doc. ID 90384); published June 27, 2008

We report an experimental study on the control of the high-order harmonic wave front through the adjustment of the wave front of the fundamental infrared laser. We have applied different levels of astigmatism to the IR beam via the use of a deformable mirror placed before the lens, and demonstrated that there exists a correlation between the IR and the high harmonic wave fronts. © 2008 Optical Society of America

OCIS codes: 190.7110, 340.7480.

## 1. INTRODUCTION

The past decade has witnessed the emergence of high-brightness, tabletop extreme ultraviolet (XUV) sources such as high harmonics (HH) or plasma-based soft x-ray lasers (SXRL). This development has been motivated by a breadth of potential applications such as microscopy [1], phase contrast imaging [2] and holography [3,4], as well as applications in atomic and molecular physics [5], solid and surface physics [6] and nonlinear optics [7]. These sources have demonstrated high brightness [8] and high-degree spatial coherence [9]. It has been shown that HH around 32 nm can be focused to a  $7\text{ }\mu\text{m}^2$  spot using a 114 mm focal length toroidal mirror at grazing incidence [10]. For a number of applications the necessity of single-shot experiments arises [11]. To serve this goal, several methods have been proposed to increase the HH energy to 1  $\mu\text{J}$  level: very long focusing geometry [12,13], amplification of HH in gaseous plasma used for optical-field ionization SXRL [14] or with a solid target [15], and two-color scheme [16]. However, for experiments, which involve phase imaging or tight focusing, the key requirement is a high optical quality of the beam characterized by a diffraction-limited wave front [17,18].

Since the wave front of HH is not intrinsically diffraction-limited, one may consider possible ways to correct it. The easiest technique relies on spatial filtering performed by focusing the HH beam onto a tiny pinhole in analogy with the method applied to other soft x-ray sources [see [18]]. The disadvantage of this technique lies in the strong reduction of the high harmonic power after spatial filtering. Another possibility for wave-front correction involves application of soft x-ray adaptive optics. However, soft x-ray adaptive optics that have been developed so far can be used only in grazing incidence geometry. In that configuration, the numerical aperture is

rather small, which hinders tight focusing and prevents from reaching a very high intensity.

The aim of our experimental study is to show a possibility to control the wave front of a HH beam due to its correlation with the wave front of the corresponding fundamental IR beam and without making use of soft x-ray adaptive optics. First we will describe the experimental setup. Then we will present the experimental results for one specific case of aberrations, i.e., astigmatism at  $0^\circ$ . We will finish with a conclusion and outlook of this work.

## 2. EXPERIMENTAL SETUP AND PROCESS

We used a 1 kHz Ti:Sa laser system delivering pulses at 810 nm, with up to 6 mJ energy, and 35 fs pulse duration. The beam diameter is 36 mm at 1/e. This laser wave front is characterized by using a visible Shack–Hartmann sensor (from Imagine Optic) coupled to a deformable mirror (from CILAS). In order to generate high-order harmonics the laser beam is focused near the entrance of a gas cell filled with low-pressure argon. The XUV wave front is measured by a homemade Hartmann sensor, realized in collaboration with Imagine Optic firm [19].

The IR laser beam is reflected onto a deformable mirror (BIM31, CILAS) used at normal incidence to ensure proper wave front corrections (Fig. 1). The deformable mirror is composed of 31 piezo-electric actuators evenly distributed behind the surface of the Ag-coated silicate mirror. When voltage is applied on actuators, the surface of the mirror is deformed.

The Shack–Hartmann sensor is optically conjugated to the deformable mirror surface using a second lens  $L_2$  placed near the focus of the first lens  $L_1$  (used for harmonic generation). With this geometry, no wave front dis-

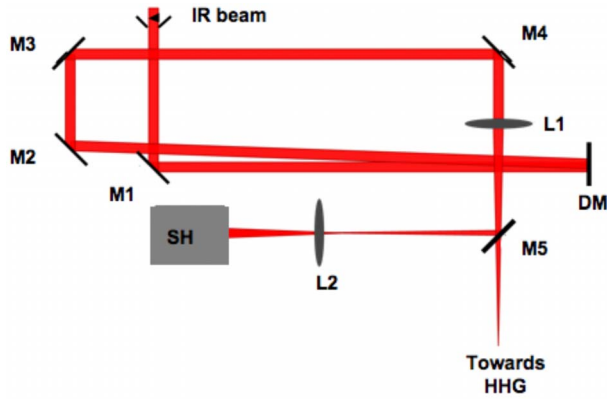


Fig. 1. (Color online) Experimental setup for IR wave front measurements using a Shack–Hartmann sensor (SH) from Imagine Optic company. The IR beam is reflected at normal incidence on the deformable mirror (DM). The wave front is measured after the lens (L1) used to focus the IR beam near the gas cell. The lens (L2) allows conjugation of the DM with the SH. Mirror (M5) is used to redirect the beam to the SH sensor or is removed to leave the path free up to the gas cell.

tortion is introduced by the conjugating lens. Moreover, the beam size at the entrance of the sensor fits precisely the circular pupil entrance with a diameter of 5 mm. Because of the circular shape of the laser beam, we may decompose the measured spatial phase onto Zernike polynomials, defined by

$$f(\rho, \tau) = \sum_{j=1}^{\infty} a_j Z_j(\rho, \tau), \quad (1)$$

where  $Z_j(\rho, \tau)$  is the  $j$ th Zernike polynomial,  $a_j$  is the coefficient for the given polynomial,  $\rho$  is the radius between 0 and 1, and  $\tau$  is the angle between 0 and  $2\pi$  defining the spatial phase in cylindrical coordinates.

The deformable mirror is usually used for flattening the laser wave front. First of all, we measured the infrared wave front without any voltage applied on the mirror. In order to determine the necessary wave front correction we used the software developed by Imagine Optic that allows precise control of the deformable mirror shape. A specific voltage is imposed onto each actuator, and the software measures the relevant wave front. These data are stored as a matrix (transfer matrix) coupling the wave front deformation and the electrical voltages. Due to the image relay between the mirror and the sensor, the transition matrix between voltages and wave fronts is composed only of linear terms. In order to correct the wave front, the software calculates the inverse matrix to apply the right voltage to the right actuator. In this work, we were interested to go a step further by setting controlled aberrations in the IR laser beam. We concentrated our study on the  $0^\circ$  astigmatism, which corresponds to 5th Zernike polynomial, since it appeared to be the dominant aberration in previous experiments. The formula (2) stands for  $0^\circ$  astigmatism:

$$Z_4(\rho, \tau) = \rho^2 \cos 2\tau. \quad (2)$$

It is possible to choose a value of the coefficient  $a_4$ , with the other coefficients for higher-order aberrations remaining at zero, and to run the deformable mirror in close-loop

with the Shack–Hartmann sensor through the transfer matrix.

The root-mean-square (rms) value  $\kappa$  (in units of  $\lambda$ ) for the spatial phase, which is directly linked to the Zernike polynomials, is given by

$$\kappa = \frac{1}{\pi} \left[ \int_0^{2\pi} d\tau \int_0^1 f^2(\rho, \tau) \rho d\rho \right]^{1/2}. \quad (3)$$

For each measurement, the software can calculate the point spread function (PSF), the rms value  $\kappa$ , and the peak-to-valley value.

Highest high-harmonic energy has been obtained with an IR beam clipped before the lens L1 at a diameter of 15 mm. The measured pulse energy of the transmitted beam is around 1.5 mJ. The high-order harmonics are generated in a gas cell filled with 27 torr of argon. The cell is 8 mm long and is placed a few millimeters after the laser focal plane. After the cell, the IR beam is filtered out by a 300 nm aluminium filter (Fig. 2) that transmitted about 10% of the harmonic beam energy. For these parameters, the generated harmonic yield in argon is limited by absorption [20]. The spectrum is mainly composed of the four harmonics from H21 to H27 with the central wavelength corresponding to 25th harmonic (32 nm). The total harmonic yield is about  $3 \times 10^9$  photons per second after the Al filter has been measured by the back-illuminated XUV CCD camera used for the Hartmann sensor described below.

The Hartmann wave front measurement technique is based on mapping the wave vectors at numerous locations across the beam aperture. The incoming beam is sampled by a hole array generating a large number of beamlets whose intensity and position are monitored by a CCD camera. The positions of the individual spot centroids are measured and compared to the positions acquired with a reference beam, i.e., a beam having a well-known wave front. The soft x-ray Hartmann sensor is made of a 100- $\mu\text{m}$ -thick nickel plate placed at about 20 cm in front of the CCD camera. The plate is constituted of  $51 \times 51$  square holes, 80  $\mu\text{m}$  in size each, and separated by 380  $\mu\text{m}$  over a  $15 \times 15 \text{ mm}^2$  area. The projected spot pattern was recorded on a cooled back-illuminated CCD (Princeton Instrument) having  $2048 \times 2048$  pixels operating at  $-40^\circ \text{C}$  with pixel size of  $13.5 \times 13.5 \mu\text{m}^2$  [21].

The reference positions have been determined by measuring the projection pattern for a pure spherical wave. This spherical wave is obtained by placing a 10  $\mu\text{m}$  diameter hole in the harmonic beam path 1 m away from the source. The sensitivity of our homemade sensor is  $\lambda/25$  rms with an accuracy of  $\lambda/50$  rms where  $\lambda = 32 \text{ nm}$  (corresponding to the 25th harmonic). Although better resolution ( $\lambda/120$  at 13 nm [18]) was reached during cali-

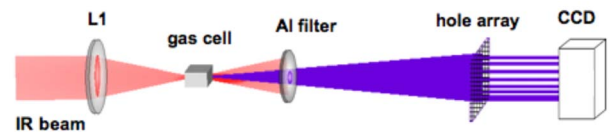


Fig. 2. (Color online) Experimental setup for high-order harmonic generation and XUV wave front measurements, showing a schematic of Hartmann sensor (hole array and CCD).

bration of this kind of sensor at ALS synchrotron facility, the current sensor sensitivity is sufficient for our purpose.

### 3. EXPERIMENTAL RESULTS

We have performed tests by observing the influence of different infrared laser aberrations such as astigmatism at  $0^\circ$  and  $45^\circ$ , coma, spherical aberrations, and trefoil on high-harmonic wave front. We especially focused on astigmatism at  $0^\circ$ , which is the dominant aberration measured for our IR laser beam [22]. When initiating the study, the infrared laser wave front deformation was about  $\lambda/1.3$  rms [Fig. 3(a)], which led to a distorted focal spot. After correction [Fig. 3(b)], the rms value reached  $\lambda/7$ , about two times the diffraction limit according to the Marechal's criterion [23]. For  $a_4 > 0$  the spot is focused along the horizontal axis  $x$  but not along the vertical axis  $y$  for  $z < f$ , and for  $a_4 < 0$ , it is the contrary.  $A_4 = 0$  stands for the best infrared wave front. Surprisingly, as shown in Fig. 3(b), a spurious astigmatism remained on the infrared beam wave front.

Figure 4 displays the rms values for IR and XUV beams versus the coefficient  $a_4$ . We expect that the IR spatial phase distortions are directly imprinted on XUV spatial phase. Indeed, if we consider the IR spatial phase as

$$\varphi(r) = \vec{k} \cdot \vec{r}, \quad (4)$$

where  $k$  is the wave-number equal to  $2\pi/\lambda$ , for the  $q$ th harmonic the spatial phase is  $q \varphi(r)$ . A spatial distortion value of  $\lambda/n$  for the IR beam will lead to a spatial distortion value of  $\lambda'/n$  where  $\lambda' = \lambda/q$ . It is important to remind that for optimization of the high harmonic flux we had to reduce the iris diameter down to 15 mm. Since the IR laser wave front measurements were performed with the full laser pupil (about 50 mm diameter), the real wave front of the IR beam interacting with the gas is naturally much better than the recorded one. Therefore, we may expect rms distortion values for the harmonic beam to be lower than the value obtained by a direct extrapolation, considering the wavelength scaling from the IR laser to the HH beam.

For the IR laser, the rms value follows the coefficient  $a_4$ , but for XUV beam, they are correlated to IR values only for  $a_4 > 0$ . The acquisition time is different for each

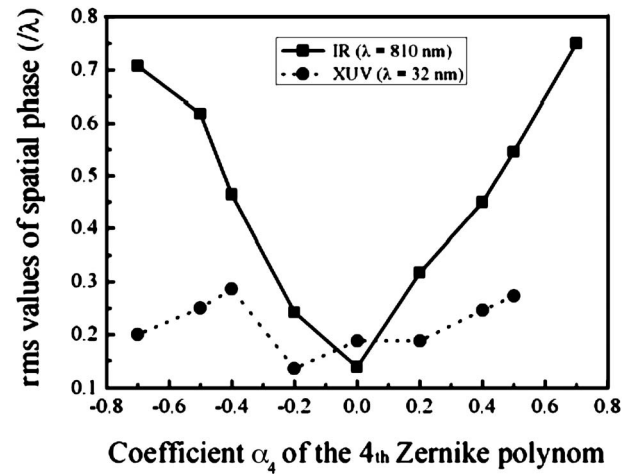


Fig. 4. rms values for the IR beam (squares and solid curve) and for the harmonic beam (circles and dots) versus  $a_4$  coefficient of the 4th Zernike polynomial (astigmatism at  $0^\circ$ ).

case: when the coefficient  $a_4$  is large, we need to acquire the signal longer (from 0.05 sec at  $a_4 = 0$  to 0.8 sec at  $a_4 = \pm 0.5$ ). For  $a_4 = \pm 0.7$ , the acquisition time is 100 times longer than for  $a_4 = 0$ . This shows that, as expected, the highest harmonic signal is obtained with the best IR laser wave front, i.e.,  $a_4 = 0$ . Figure 5(e) shows that slight astigmatism must be added to the IR laser wave front in order to correct the XUV astigmatism. In that case, aberrations with higher order (here mainly coma) are observed. For a high coefficient  $a_4$ , the focal spot is completely distorted, leading to the absence of the harmonic signal on the CCD camera. PSF calculated by the software also distorted the focal spot leading to a dramatic loss of infrared laser intensity. For such cases, we were not able to perform any XUV wave front measurement. For  $a_4 < 0$ , the rms values do not clearly follow the IR ones. We considered that clipping the IR beam after reflection on the adaptive optics hinders observation of a weak astigmatism. Indeed, as shown on Fig. 5, the astigmatism mainly affects the outer part of the beam. To observe an effect on the high harmonic generation (HHG) wave front, we have had to set strong astigmatism in order to modify the wave front of the central part of the beam. The fact that astigmatism does not affect the HHG

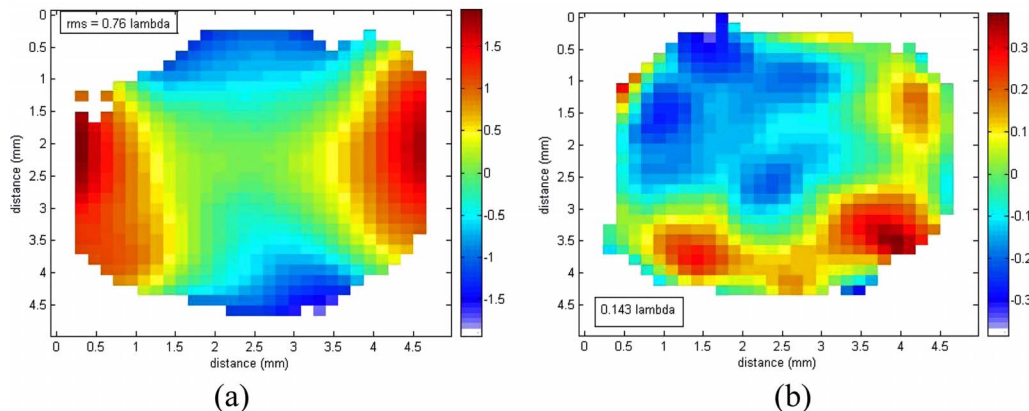


Fig. 3. (Color online) Measured IR beam wave front (a) without correction and (b) after one close-loop iteration. The pupil size is  $5 \times 5 \text{ mm}^2$ . The rms value is  $0.76 \lambda$  for the case (a) and  $0.143 \lambda$  for the case (b). We observed a slight residual astigmatism.



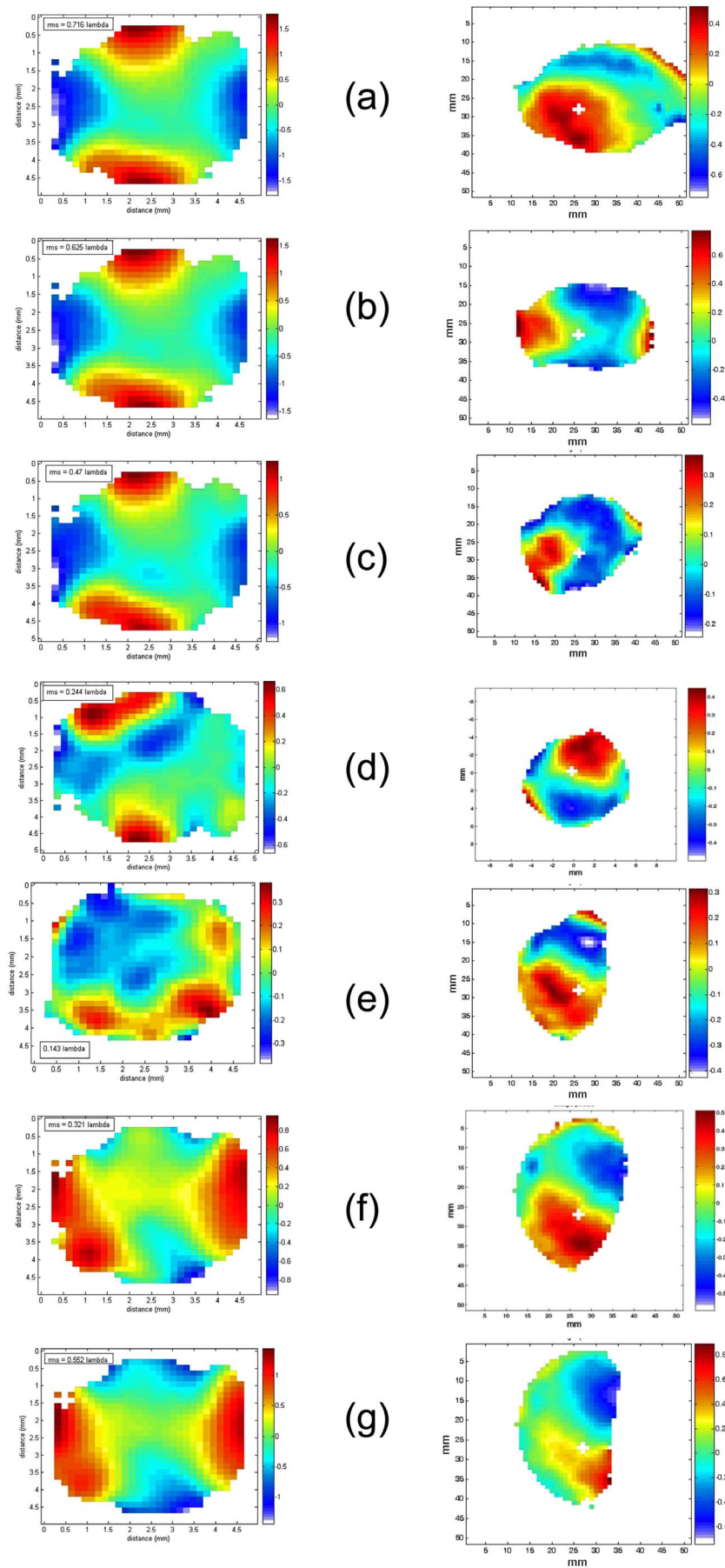


Fig. 5. (Color online) Comparison between the IR-beam (left) and the XUV-beam (right) wave fronts for different coefficient: (a)  $a_4 = -0.5$ , (b)  $a_4 = -0.4$ , (c)  $a_4 = -0.2$ , (d)  $a_4 = 0$  (e)  $a_4 = 0.2$ , (f)  $a_4 = 0.4$ , (g)  $a_4 = 0.5$ . The maps are displayed in false color.

wave front symmetrically for  $a_4 < 0$  and  $a_4 > 0$  might be related to a remaining spurious astigmatism at  $a_4 = 0$ .

The main result is that the rms value has been reduced down to  $\lambda_{\text{XUV}}/7$ , showing that very tight harmonic focusing is possible with 40% of the energy encircled in the focal spot. This is a significant improvement (factor of 6) of the high-harmonic wave front.

#### 4. DISCUSSION

We have noticed that the best XUV spatial phase is obtained for  $a_4 = -0.2$  Fig. 5(c) and not for the initial IR beam. It might be related to a slight remaining astigmatism in the IR laser beam. As pointed out above, the IR wave front is not measured at the position of the gas cell. In fact, the IR beam goes through a 5 mm thick window and 8 mm gas cell. We may assume that in these two media the radial geometry for the IR laser beam is not disturbed. The linear dispersion in each medium will not modify the wave front. Following the conclusion of previous works [24,25] studying nonlinear effects on propagation, like Kerr effect, we estimated these effects to be negligible at the present intensity and follow the radial symmetry anyway. Nevertheless, we will study this point further by measuring the wave front of the IR laser purely as well as the IR wave front before and after the gas cell. The experimental setup for HHG and the quality of the adaptive optics used will also be further improved.

#### 5. CONCLUSION

We were able to measure both the IR and the XUV wave fronts and compare the root-mean-square values for their distortion when a specific aberration was applied to the IR beam. We have demonstrated that the two measurements are well correlated. Due to the open-loop correction, XUV wave-front distortion was reduced by a factor of 6 down to  $\lambda/7$  rms, where  $\lambda = 32$  nm, corresponding to twice the diffraction limit.

Further experiments in collaboration with the Imagine Optic firm are envisaged to control the XUV wave front directly by using a close-loop between the Hartmann sensor and the deformable mirror. Calculations of 3D harmonic beam propagation will allow simulation of the XUV wave front at the output of the gas cell.

The delivery of good-optical-quality XUV sources based on high harmonic generation (HHG) is of great importance for future applications such as holography and XUV light interaction with matter as well as for seeding plasma soft x-ray lasers or free-electron lasers.

#### ACKNOWLEDGMENT

The author thanks Arnaud Chiron from LOA for fruitful discussions on this subject. Financial support for this work was provided by the TUIXS European project (Table top Ultra Intense XUV Sources) FP6 NEST-Adventure n. 012843.

#### REFERENCES

1. W. Chao, B. D. Harteneck, J. A. Liddle, E. H. Anderson, and D. T. Attwood, "Soft X-Ray microscopy at a spatial resolution better than 15 nm," *Nature* **435**, 1210–1213 (2005).
2. J. Filevich, J. J. Rocca, M. C. Marconi, R. F. Smith, J. Dunn, R. Keenan, J. R. Hunter, S. J. Moon, J. Nilsen, A. Ng, and V. N. Schlyaptsev, "Picosecond-resolution soft-x-ray laser plasma interferometry," *Appl. Opt.* **43**, 3938–3938 (2004).
3. A.-S. Morlens, J. Gautier, G. Rey, P. Zeitoun, J. P. Caumes, M. Kos-Rosset, H. Merdji, S. Kazamias, K. Cassou, and M. Fajardo, "Submicrometer digital in-line holographic microscopy at 32 nm with high-order harmonics," *Opt. Lett.* **31**, 3095–3097 (2006).
4. R. A. Bartels, A. Paul, H. Green, H. C. Kapteyn, M. M. Murnane, S. Backus, I. P. Christov, Y. Liu, D. Attwood, and C. Jacobson, "Generation of spatially coherent light at extreme ultraviolet wavelengths," *Science* **297**, 376–378 (2002).
5. M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, M. Uiberacker, V. Yakovlev, A. Scrinzi, TH. Westerwalbesloh, U. Kleinberg, U. Heinzmann, and F. Krausz, "Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy," *Nature* **419**, 803–807 (2002).
6. J. Gaudin, G. Geoffroy, S. Guizard, G. Petite, S. M. Klimentov, S. V. Garnov, P. A. Pivovarov, B. Carré, A. Belsky, and P. Martin, "Photoconductivity and photoemission studies of diamond irradiated by ultrashort VUV pulses," *Appl. Phys. B* **78**, 1001–1004 (2004).
7. N. A. Papadogiannis, L. A. A. Nikolopoulos, D. Charalambidis, G. D. Tzakiris, P. Tzallas, and K. Witte, "Two-photon ionization of He through a superposition of higher harmonics," *Phys. Rev. Lett.* **90**, 133902 (2003).
8. H. T. Kim, I. J. Kim, V. Tosa, Y. S. Lee, and C. H. Nam, "High brightness harmonic generation at 13 nm using self-guided and chirped femtosecond laser pulses," *Appl. Phys. B* **78**, 863–867 (2004).
9. L. Le Déroff, P. Salières, B. Carré, D. Joyeux, and D. Phalippou, "Measurement of the degree of spatial coherence of high-order harmonics using a Fresnel-mirror interferometer," *Phys. Rev. A* **61**, 043802 (2000).
10. C. Valentin, D. Douillet, S. Kazamias, Th. Lefrou, G. Grillon, F. Augé, G. Mullot, Ph. Balcou, P. Mercère, and Ph. Zeitoun, "Imaging and quality assessment of high-harmonic focal spots," *Opt. Lett.* **28**, 1049–1051 (2003).
11. Y. Nagata, K. Furusawa, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa, "Single-shot spatial-coherence measurement of 13 nm high-order harmonic beam by a Young's double-slit measurement," *Opt. Lett.* **32**, 722–724 (2007).
12. J.-F. Hergott, M. Kovacev, H. Merdji, C. Hubert, Y. Mairesse, E. Jean, P. Breger, P. Agostini, B. Carré, and P. Salières, "Extreme-ultraviolet high-order harmonic pulses in the microjoule range," *Phys. Rev. A* **66**, 021801 (2002).
13. E. Takahashi, Y. Nabekawa, T. Otsuka, M. Obara, and K. Midorikawa, "Generation of highly coherent submicrojoule soft x rays by high-order harmonics," *Phys. Rev. A* **66**, 021802 (2002).
14. P. Zeitoun, G. Faivre, S. Sebban, T. Mocek, A. Hullou, M. Fajardo, D. Aubert, P. Balcou, F. Burgy, D. Douillet, S. Kazamias, G. de Lachèze-Murel, T. Lefrou, S. le Pape, P. Mercère, H. Merdji, A. S. Morlens, J. P. Roussau, and C. Valentin, "A high-intensity highly coherent soft X-ray femtosecond laser seeded by a high harmonic beam," *Nature* **431**, 426–429 (2004).
15. Y. Wang, E. Granados, M. A. Larotonda, M. Berrill, B. M. Luther, D. Patel, C. S. Menoni, and J. J. Rocca, "High-brightness injection-seeded soft-X-ray-laser amplifier using a solid target," *Phys. Rev. Lett.* **97**, 123901 (2006).
16. J. Kim, C.-M. Kim, H.-T. Kim, G.-H. Lee, Y.-S. Lee, J.-Y. Park, D.-J. Cho, and C.-H. Nam, "Highly efficient high-harmonic generation in an orthogonally polarized two-color laser field," *Phys. Rev. Lett.* **94**, 243901 (2005).
17. D. G. Lee, J. J. Park, J. H. Sung, and C. H. Nam, "Wave-

- front phase measurements of high-order harmonic beams by use of point-diffraction interferometry," *Opt. Lett.* **28**, 480–482 (2003).
18. P. Mercère, P. Zeitoun, M. Idir, S. Le Pape, D. Douillet, X. Levecq, G. Dovillaire, S. Bucourt, K. A. Goldberg, P. P. Naulleau, and S. Rekawa, "Hartmann wave-front measurement at 13.4 nm with  $\lambda_{\text{EUV}}/120$  accuracy," *Opt. Lett.* **28**, 1534–1536 (2003).
  19. Imagine Optic: [http://www.imagine-optic.com/home\\_fr.php](http://www.imagine-optic.com/home_fr.php)
  20. S. Kazamias, D. Douillet, F. Weihe, C. Valentin, A. Rousse, S. Sebban, G. Grillon, F. Augé, D. Hulin, and Ph. Balcou, "Global optimization of high harmonic generation," *Phys. Rev. Lett.* **90**, 193901 (2003).
  21. J. Gautier, P. Zeitoun, C. Hauri, A.-S. Morlens, G. Rey, C. Valentin, E. Papalazarou, J.-P. Goddet, S. Sebban, F. Burgy, P. Mercère, M. Idir, G. Dovillaire, X. Levecq, S. Bucourt, M. Fajardo, M. Merdji, and J.-P. Caumes, "Optimization of the wave front of high-order harmonics," *Eur. Phys. J. D*, DOI: 10.1140/epjd/e2008-00123-2 (2008).
  22. O. Boyko, "Optimisation d'une source d'harmoniques d'ordre élevé par contrôle actif du laser générateur," Ph.D. Thesis, Ecole Polytechnique, France (2006).
  23. J. W. Goodman, *Introduction to Fourier Optics*, 3rd Ed. (Roberts & Company, 2005).
  24. P. Villoresi, S. Bonora, M. Pascolini, L. Poletto, G. Tondello, C. Vozzi, M. Nisoli, G. Sansone, S. Stagira, and S. De Silvestri, "Optimization of high-order harmonic generation by adaptative control of a sub-10-fs pulse wave front," *Opt. Lett.* **29**, 207–209 (2004).
  25. D. Yoshitomi, J. Nees, N. Miyamoto, T. Sekikawa, T. Kanai, G. Mourou, and S. Watanabe, "Phase-matched enhancements of high-harmonic soft X-rays by adaptative wave-front control with a genetic algorithm," *Appl. Phys. B* **78**, 275–280 (2004).

## An optimized kHz two-colour high harmonic source for seeding free-electron lasers and plasma-based soft x-ray lasers

G Lambert<sup>1,4</sup>, J Gautier<sup>1</sup>, C P Hauri<sup>2</sup>, Ph Zeitoun<sup>1</sup>, C Valentin<sup>1</sup>, T Marchenko<sup>1</sup>, F Tissandier<sup>1</sup>, J Ph Goddet<sup>1</sup>, M Ribiere<sup>1</sup>, G Rey<sup>1</sup>, M Fajardo<sup>3</sup> and S Sebban<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Laboratoire d'Optique Appliquée, ENSTA-CNRS-École Polytechnique, Chemin de la Hunière, 91761 Palaiseau, France

<sup>2</sup> Paul Scherrer Institute, 5232 Villigen, Switzerland

<sup>3</sup> Centro de Física dos Plasmas/Instituto Superior Técnico, Av. Rovisco Pais, 1049-001 Lisboa, Portugal

E-mail: [guillaume.lambert@ensta.fr](mailto:guillaume.lambert@ensta.fr)

*New Journal of Physics* **11** (2009) 083033 (17pp)

Received 31 March 2009

Published 28 August 2009

Online at <http://www.njp.org/>

doi:10.1088/1367-2630/11/8/083033

**Abstract.** Free-electron lasers (FEL) and plasma-based soft x-ray lasers (PSXL) have been recently evolving very fast from the vacuum ultraviolet to the soft x-ray region. Once seeded with high harmonics, these schemes are considered as the next generation soft x-ray light sources delivering ultrashort pulses with high temporal and spatial coherence. Here, we present a detailed experimental study of a kHz two-colour high harmonic generation performed in various gases and investigate its potential as a suitable evolution of the actual seeding sources. It turns out that this double harmonic content source is highly tuneable, controllable and delivers intense radiation (measured here with a calibrated photodiode) with only one order of magnitude difference in the photon yield from 65 to 13 nm. Then, first and foremost, injections could be achieved at wavelengths shorter than what was previously accessible in FEL and PSXL and/or additional energy could be extracted. Also, such a strong and handy seed could allow the saturation range of FEL devices to be greatly extended to shorter wavelengths and would bring higher spectral as well as intensity stabilities in this spectral zone.

<sup>4</sup> Author to whom any correspondence should be addressed.



## Contents

<b>1. Introduction</b>	<b>2</b>
<b>2. Experimental considerations</b>	<b>4</b>
<b>3. Typical spectral and intensity evolutions</b>	<b>7</b>
<b>4. Optimization of the flux</b>	<b>9</b>
<b>5. A source for seeding FEL or PSXL</b>	<b>12</b>
<b>6. Conclusions and perspectives</b>	<b>15</b>
<b>Acknowledgments</b>	<b>16</b>
<b>References</b>	<b>16</b>

## 1. Introduction

Seeding plasma-based soft x-ray lasers (PSXL) [1]–[6] and free-electron lasers (FEL) [7, 8] with high-order harmonics (HH) generated in gas from the vacuum ultraviolet (VUV,  $\approx 80$ – $130$  nm) to the soft x-ray ( $\approx 10$ – $40$  nm) region is a quite recent but emerging topic. Indeed, it has already opened significant perspectives for developing the ultimate future relatively compact coherent jitter-free and aberration-free source, in order to observe the ultrafast dynamics of matter at the nanometre scale. Although seeding was originally employed for different motivations in FEL and PSXL, in both cases it relies on benefits from the high-quality properties of the HH source, particularly the ultrashort pulse duration or the high degree of spatial and temporal coherence [9, 10]. On the other hand, seeding can help to overcome the main HH limitation, the relatively low peak power for single shot applications.

The first highly successful seeding experiment in a PSXL was performed in 2000 at  $32.8$  nm in a Ni-like Kr optical field ionized (OFI) amplifier [1]. Before that, in all the PSXL operating at saturation, population inversion between the levels of the lasing ion was induced by electron collisional excitation in a single pass, providing a high gain value at short wavelength in an amplified spontaneous emission (ASE). Yet, this radiation was characterized by a long pulse duration, an inhomogeneous beam profile and a low spatial coherence.

In the seeding configuration of PSXL, the injected beam acts as an ‘oscillator’ for a classical laser chain, leading to the generation of a high optical spatial quality beam, which is amplified while propagating through the population inverted plasma column. This relatively compact device then combines the production of an intense emission, due to the high energy extracted from the plasma amplifier (sub-microjoule), to the high optical spatial quality of the harmonic beam [4]. More recently, seeding of PSXL was also carried out in more dense plasmas than in the OFI scheme, in order to obtain higher saturation and broader spectral linewidth for reaching shorter pulse durations in the femtosecond scale (limited to picoseconds nowadays). These plasmas are created from solid targets, either Ne-like (Mn [2] and Ti [3] at, respectively,  $26.9$  and  $32.6$  nm) or Ni-like (Mo [5], Ag [5] and Cd [6] at  $18.9$ ,  $13.9$  and  $13.2$  nm) ions.

Since the beginning of this century, novel linear accelerator-based single-pass FEL sources have been emerging around the world. Presently, different sites have implemented or plan to implement soon seeding schemes in their facilities as a main mode of functioning. The first proof-of-principle seeding experiment was conducted in 2007 at  $160$  nm [8] at the SCSS (SPring-8 Compact SASE Source, Japan) Test Accelerator [11]. The next scheduled

test-bed HH seeding facility is SPARC (Sorgente Pulsata e Amplificata di Radiazione Coerente, Italy) [12], which is almost ready to deliver photons in the VUV region down to 114 nm. sFLASH (seeded Free-electron LASer of Hamburg) [13, 14] is also now being designed and should operate in 2010 in the soft x-ray region from 30 to 13 nm. FERMI (Italy) [15] and MAX-IV (Sweden) [16] FELs also expect to use 20–30 nm HH sources for seeding. Other projects, such as SPARX (1.5 nm, Italy) [17], ARC-EN-CIEL (0.8 nm, France) [18] and PSI-XFEL (0.1 nm, Switzerland) [19] consider seeding as a valuable option for x-rays. In these proposals, some additional amplification stages of FEL harmonics of the seed, like in high-gain harmonic-generation (HGHG) [20] and cascade [21, 22] configurations, will be coupled to the soft x-ray seed injection.

Essentially, the seeding configuration in FEL is a direct evolution of the classical self-amplified spontaneous emission (SASE) [23, 24], which provides a very high brightness emission (maximum of 100  $\mu$ J in pulses of less than 100 fs duration) at short wavelengths but with a limited temporal coherence. The spectral and temporal profiles are typically composed of a series of randomly distributed spikes, reflecting the stochastic nature of the SASE generation process that is the amplification of noise. In seeding arrangements, the amplification is triggered by the strong harmonic seed rather than the noise floor, leading to strong and coherent amplified FEL radiation. The proof-of-principle experiment showed that the 160 nm light could be coherently amplified, while the seeded energy per pulse was of the order of a nanojoule [8]. The single shot seeded emission then achieved three orders of magnitude higher intensity than the unseeded one and a factor of 500 compared to the seed, almost reaching the microjoule level. Moreover, the corresponding spectral distribution presented a regular quasi-perfect Gaussian shape.

As most of the applications aim at the wavelength range from soft x-ray to x-ray ( $<10$  nm), valuable HH seed intensity is required in this spectral range, where unluckily the efficiency of the classical harmonic generation, from an 800 nm Ti:Sa laser system, has a sharp decrease. In addition, for seeding an FEL, the injected peak power must overcome the electron beam shot noise, which is inversely proportional to the wavelength of emission [25]. Finally, seeding with high harmonics should not have any constraint on the machine performance, such as the repetition rate and the tuneability. This is why there is an urgent need for developing new HH sources, more intense at shorter wavelengths, with higher repetition rates, larger tuneability, and with an easy control of the injection parameters (mainly wavelength, intensity and pulse duration).

One of the solutions could be the use of a 1.2–1.5  $\mu$ m parametric amplifier [26] in order to get a viable continuously tuneable seed source in the soft x-ray region. Indeed, as this involves working with a higher fundamental wavelength (compared to an 800 nm Ti:Sa laser), the maximum of the emission is blueshifted (equations (2) and (3)) and lower wavelengths can be reached. Yet, the efficiency of generation is, in this case, rather weak, and as a consequence it strongly limits the feasibility of seeding with such a technique.

Recently, a Korean team observed in an orthogonally polarized two-colour laser field technique [27], consisting of mixing the fundamental frequency ( $\omega$ , actually the fundamental pulsation) and its second harmonic ( $2\omega$ ) generated in a beta barium borate (BBO, type 1) crystal, a strong enhancement of the harmonic generation efficiency in a helium gas jet [28] at 21.6 nm and with a 10 Hz Ti:Sa laser. The increase has been explained using the so-called semiclassical three-step model (free electrons tunnelled from the gas atom, oscillating in the laser field and which can be recombined with the atom core in a radiative process); the

two-colour laser field induces a selection of the short electron quantum path, for which the specific moment when the electrons are released from the atom corresponds to a 10 times higher ionization rate than with the single-colour field [29].

We present here a detailed experimental study of this method applied to a kHz laser system. Our frequency doubling geometric configuration is more straightforward than the Koreans' one [28], where the phase difference induced by the BBO crystal between  $\omega$  and  $2\omega$  was controlled via the addition of a silicate plate on both beam paths. In our case, we do not use the commonly used plate since we did not observe in our experimental conditions any additional significant increase of the HH yield. Moreover, as this component has to be placed between the BBO crystal and the gas medium, the laser dimensions are small at this position, causing long-term damage to the plate surface due to the kHz repetition rate and thus strongly limiting the efficiency of the harmonic generation process. As a result, our proposed setup is very simple and can be easily implemented in HH seeding schemes.

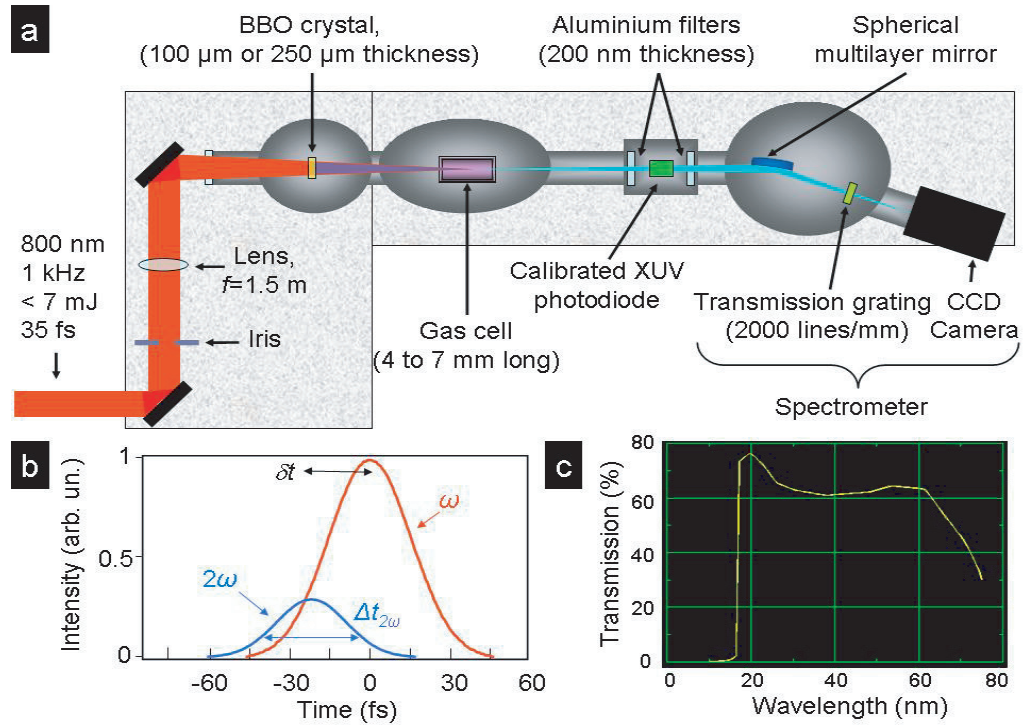
A series of spectra has been obtained in the range from 65 nm down to 17 nm using diverse gases for generation and also different optimization parameters compared to the ones used for  $\omega$ . It mainly showed a higher efficiency for He and Ne gases generating at shorter wavelengths and a significant control of the harmonic intensity for specific orders via the gas pressure, the gas cell length and the intensity of the  $2\omega$  component. In summary, this two-colour experiment should fulfil all the above-mentioned seeding requirements for PSXL and FEL.

Finally, based on numerical simulations, realistic harmonic seeding experiments which could be performed on the SCSS Test Accelerator (the only actual HH seeded FEL in operation) at wavelengths shorter than 55 nm is presented. This value corresponds to the fundamental wavelength limit, below which the full saturation is no longer reached in the SASE mode. Seeding with an intense seed beam, obtained in the two-colour configuration, would then allow the saturation to be extended towards the soft x-ray region. In combination with the possibility of controlling the high harmonic spectra with the two-colour technique (maximum of intensity at the desired wavelength), this seeding will provide users with much more stable light, not only at the designed FEL wavelength for the SASE mode but also within a much larger wavelength range.

## 2. Experimental considerations

The two-colour ( $\omega + 2\omega$ ) harmonic generation experiment was performed at the Laboratoire d'Optique Appliquée (France) by means of a kHz Ti:Sa laser system at 800 nm ( $\omega$ ), delivering a maximum of 7 mJ energy in 35 fs full-width at half-maximum (FWHM) pulses. Figure 1(a) presents a scheme of the setup. In order to generate the 400 nm radiation ( $2\omega$ ), a BBO (type 1) doubling crystal, is directly inserted in the infrared (IR) beam path between a 1.5 m focusing lens and a gas cell (typically 4–7 mm long). In this geometry, the second harmonic component propagates along the same axis as the IR beam, and consequently the spatial overlap between the  $\omega$  and  $2\omega$  parts is automatically achieved in the active medium. Moreover, the polarization of the second harmonic is perpendicular to the polarization of the fundamental frequency, which corresponds to the situation of the most efficient harmonics generation, according to latest results [28].

Due to the group velocity mismatch between  $\omega$  and  $2\omega$  in the nonlinear crystal, the IR beam is delayed (18.7 fs for 100  $\mu$ m thick BBO) compared to the blue beam (figure 1(b)). Also, this latter beam can get a longer pulse duration, approximately equal to the induced delay plus



**Figure 1.** (a) Layout of the kHz two-colour high harmonic generation experiment with a BBO crystal inserted directly in the IR beam path.  $f$  is the focal length of the lens used for generating harmonics. (b) Schematic intensity profile in the time domain of  $\omega$  and  $2\omega$  components after passing through the 100  $\mu\text{m}$  thickness doubling-frequency crystal.  $\delta t$  is the temporal shift between  $\omega$  and  $2\omega$  induced by the group velocity mismatch in the nonlinear crystal.  $\Delta t_{2\omega}$  is the pulse duration of the  $2\omega$  component. (c) Typical transmission of a pure aluminium filter in the VUV to the soft x-ray range, calculated from the centre for x-ray optics (CXRO) website [30] with 200 nm of Al thickness.

a certain percentage ( $\approx 50\%$ ) of the IR beam pulse duration, as the energy of this latter beam is in general not high enough in the pulse wings to generate the 400 nm emission. To be more specific, the pulse duration should be estimated with the following typical law:

$$\Delta t_{2\omega} \approx \sqrt{\delta t^2 + \frac{(\Delta t_{\omega})^2}{2}}. \quad (1)$$

While for a 100  $\mu\text{m}$  thick BBO the pulse duration should be close to the fundamental one ( $\approx 30\text{--}35$  fs FWHM), for a 250  $\mu\text{m}$  thick BBO it should attain about 50–55 fs FWHM. As a consequence, in our particular geometrical configuration where no control of the phase and delay between the two beams can be performed, the  $2\omega$  component first arrives in the gas cell and the temporal overlap is not optimized. In general, the thicker the crystal, the higher the  $2\omega$  component intensity but the smaller the temporal overlap. This explains why we limit the BBO thickness to 250  $\mu\text{m}$ , which seems to be, however, thick enough for the purpose of the experiment. Also, as previously mentioned, the addition of a well-chosen silicate plate in our experimental conditions did not bring about any further increase of the HH flux. For a shorter

fundamental pulse duration and/or a thicker BBO crystal, the addition of a silicate plate must be reconsidered.

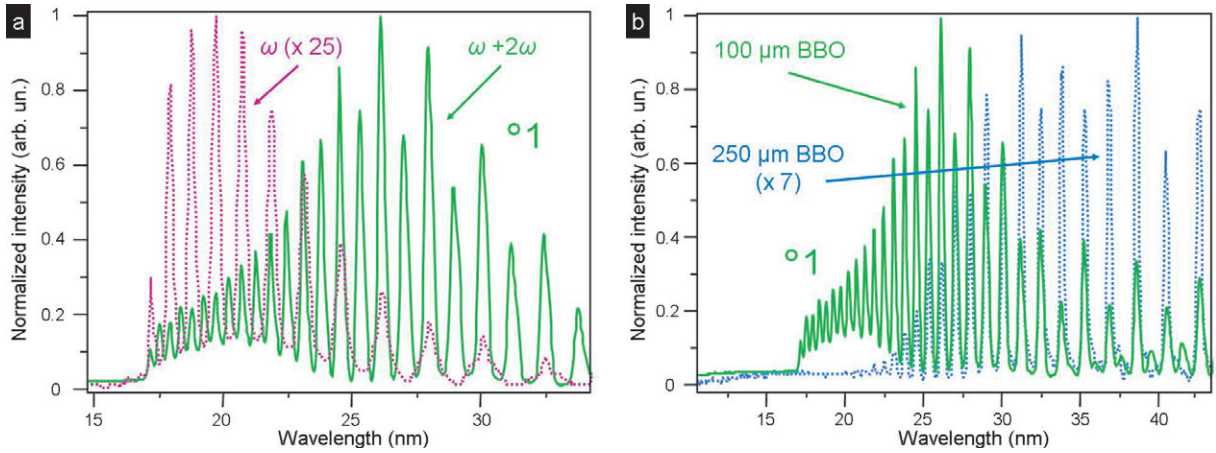
Actually, the other basic parameters characterizing the generation in a two-colour configuration, such as the intensities of the fundamental and blue beams at the generating position in the cell, and the real gas pressure inside the cell, are difficult to evaluate.

For instance, if the available energy of the IR laser delivered by the Ti:Sa system at the exit of the compressor and contained in the full aperture beam ( $\phi = 40$  mm in  $1/e^2$ ) is well known ( $E_\omega$ ), the actual value of the energy used is quite low mainly due to an important number of optical components placed in the IR laser path. Moreover, the laser intensity corresponding to the position of generation in the gas cell ( $I_\omega$ ) is lower than the one deduced from the parameters provided at first. Indeed, the IR beam is focused some millimetres after the centre of the gas cell for optimizing the process of generation, giving a quite larger focal spot at the central position of the gas cell. Then, in order to quantify both fundamental and second harmonic intensities ( $I_\omega$  and  $I_{2\omega}$ , respectively), one has to first consider the generation efficiency of the crystal for producing the blue beam. One can consider typical values of 25 and 35% for a 100 and 250  $\mu\text{m}$  thick BBO, respectively. Secondly, as for perfectly Gaussian beams, the 400 nm spatial beam profile at the doubling crystal location would be proportional to the square of the intensity profile of the 800 nm beam, the focal spot of the  $2\omega$  diffraction-limited beam would have a size 1.414 ( $\sqrt{800/400}$ ) times smaller than the fundamental. Thirdly, in a  $\omega + 2\omega$  process, the harmonics are generated in the region where both beams are superposed, that is, in our configuration, in the focusing region of the blue beam. As a consequence, the intensity of the IR beam considered for the generation is about 15% smaller than that of the total intensity. Finally, for gases that can be easily ionized, like argon, the harmonic yield can be maximized by clipping the IR beam with an iris (figure 1(a)), changing both energy (decrease) and waist (increase). In this well-established technique [31], a compromise is performed between considerations of focal geometry and ionization for small apertures and harmonic dipole amplitude and phase for large apertures. For all these reasons, values of  $I_\omega$  and  $I_{2\omega}$  which will be provided in the caption of figures are only estimations of the intensities corresponding to the position of generation in the gas cell (not to the focusing position) and are based on all these above-mentioned statements and not on measurements.

Also,  $P_G$  represents the pressure measured at the exit of a controllable valve, which regulates the amount of pressure to be delivered and which is placed far from the gas cell, and is clearly not the real pressure inside the gas cell, but its upper limit.

The system for detecting the harmonic intensity content is based on a spectrometer composed of a spherical mirror at grazing incidence ( $15^\circ$ ) with 800 nm anti-reflection coating ( $\text{ZrO}_2/\text{Si}$  multilayer deposit), a transmission grating (2000 lines  $\text{mm}^{-1}$  with a flat diffraction efficiency as a function of the wavelength in the presented spectral range) and a CCD camera (Princeton,  $1340 \times 400$  pixels,  $20 \times 20 \mu\text{m}^2$ ). From the recorded pictures (vertical position as a function of the wavelength), spectra are obtained by cuts in the horizontal plan and by the integration of this cut over the vertical dimension. Finally, they can be calibrated in absolute energy per pulse by means of a solarblind XUV photodiode (from NIST laboratory). Two thin aluminium filters ( $\approx 200$  nm thickness each) prevent the IR beam from propagating to the spectrometer, but unfortunately also attenuate the HH photon flux. From 65 to 17 nm, the filter transmission assuming pure aluminium is approximately 60% (figure 1(c)), but is reduced to a few per cent when taking oxidation into account. Below 17 nm, the transmission is close to zero, which gives an explanation of the fast decrease of signal observed in the following spectra.





**Figure 2.** Normalized intensity HH spectra obtained with neon gas with either  $\omega$  or  $\omega + 2\omega$  technique and with the same optimization parameters as for  $\omega$ :  $E_\omega = 6$  mJ,  $\phi = 40$  mm,  $L_C = 7$  mm and  $P_G = 35$  mbar. (a)  $\omega$  ( $I_\omega \approx 7 \times 10^{14}$  W cm $^{-2}$ ) and  $\omega + 2\omega$  (100  $\mu$ m thick BBO crystal,  $I_\omega \approx 4.5 \times 10^{14}$  W cm $^{-2}$  and  $I_{2\omega} \approx 3.4 \times 10^{14}$  W cm $^{-2}$ ). (b)  $\omega + 2\omega$  with either 100 or 250  $\mu$ m thick BBO crystal ( $I_\omega \approx 3.9 \times 10^{14}$  W cm $^{-2}$  and  $I_{2\omega} \approx 4.8 \times 10^{14}$  W cm $^{-2}$ ). The curves which are presented several times in the different figures, are marked with a ‘o’ symbol in order to be recognized.

### 3. Typical spectral and intensity evolutions

The relatively high energy provided by our kHz IR laser allowed detailed study of a high repetition rate harmonic generation source with two-colour mixing in many gases. The IR peak power densities ( $I_{\text{Laser}}$ ) required for the ionization of xenon, krypton, argon, neon and helium ( $I_P$ , the ionization potentials of atoms) are 0.7, 1, 2, 4 and  $7 \times 10^{14}$  W cm $^{-2}$ , respectively. For any type of gas, two-colour effects are visible, and consist of three significant evolutions. The spectra for krypton are not presented in the paper in order to clarify the figures and the text, as its emission spectral region is fully covered by the ones of Ar and Xe. Figure 2, which presents the normalized intensity spectra obtained with Ne and with either the  $\omega$  or  $\omega + 2\omega$  technique, illustrates these three issues here.

Firstly, the harmonic content is doubled. Compared to classical harmonic generation, in which only odd orders of the fundamental frequency are produced, here even orders are also present: both  $2 \times (2n + 1)$  components, the odd harmonics naturally generated by  $2\omega$ , and  $2 \times (2n)$  components, coming from the mixing itself, where  $n$  is an integer.

Secondly, there is a redshift of the whole spectrum, i.e. a shifting to lower harmonic orders of the cut-off, the region where the number of photons starts to decrease fast. In a standard harmonic generation process, the spectral energy position of the cut-off,  $E_{\text{cut-off}}$  (equation (2)), is mainly determined by the maximum of energy gained by the tunnelled electrons, oscillating in the laser field. This energy is equal to  $3.2U_P$ , where  $U_P$  (equation (3)) is the ponderomotive potential.

$$E_{\text{cut-off}} = I_P + 3.2U_P, \quad (2)$$

$$U_P = I_{\text{Laser}} \lambda_{\text{Laser}}^2, \quad (3)$$

where  $\lambda_{\text{Laser}}$  is the wavelength of the laser that generates the harmonics.

In our mixing case, a first approach to explain the general behaviour would be to simply consider that the laser is neither the IR beam nor the blue beam, but a ‘mixed’ beam, whose intensity and wavelength are bounded by the  $\omega$  and  $2\omega$  ones. As a consequence, with the presence of the  $2\omega$  element, the maximum of energy reached by the electrons is decreased, as  $U_p$  is squarely dependent on the wavelength of the laser. This implies an increase of the cut-off position in terms of wavelength.

To be more specific, the intensity and wavelength are balanced by the  $\omega/2\omega$  ratio. As a proof, the redshift is clearly dependent on the BBO thickness (figure 2(b)). The higher the BBO efficiency, the stronger the  $2\omega$  component compared to the  $\omega$  component and the longer the wavelength where the cut-off occurs. These effects can also be partially explained by the delay evolution between the two beams. Indeed, in our geometrical configuration, the blue component arrives faster and faster in the medium with longer BBO thickness, and as the harmonic production is mainly affected by the front part of the arriving pulses, the  $2\omega$  component grows compared to the  $\omega$  one and the  $\omega/2\omega$  ratio decreases again.

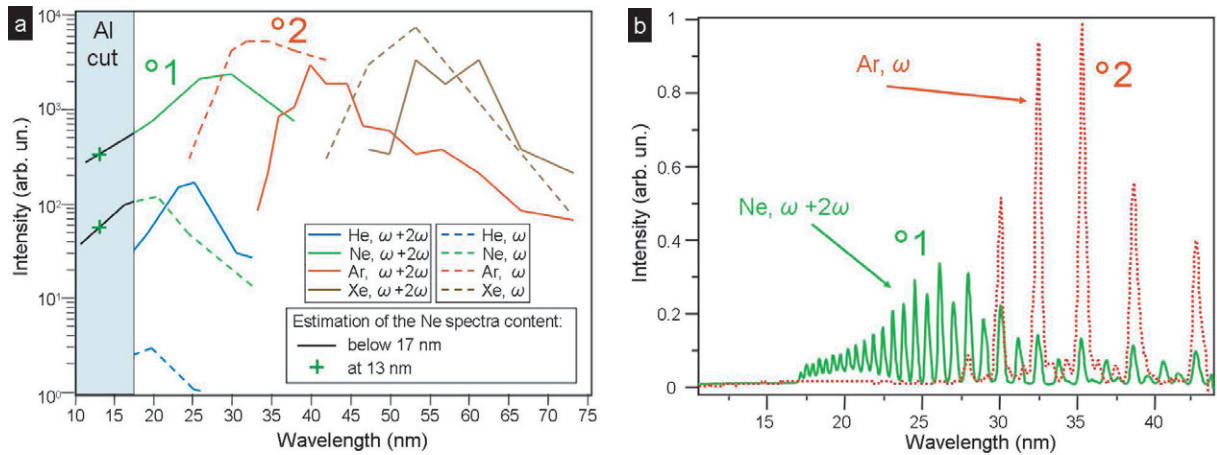
Thirdly, a high factor of increase is observed here (figure 2(a)) when keeping the same optimization parameters as for  $\omega$ , such as the energy and the IR beam aperture (respectively  $E_\omega$  and  $\phi$ ), the gas pressure ( $P_G$ ) and the cell length ( $L_C$ ). Spectra present a relatively flat distribution with an intensity ratio from odd to even harmonics close to one, and the intensification arises over the whole spectrum.

Also, this enhancement is clearly dependent on the considered gas (figure 3(a)), typically He ( $\times \approx 100$ ), Ne ( $\times \approx 25$ ), Ar ( $\times \approx 0.5$ ), Kr ( $\times \approx 0.5$ ) and Xe ( $\times \approx 0.5$ ). As in a two-colour harmonic generation arrangement, the increasing efficiency has been explained by a higher ionization rate [29]; it could also be stated that the lower the ionization rate in the traditional harmonic generation (helium and neon), the stronger the enhancement factor with the mixing. For gases typically rather efficient like argon, krypton and xenon and using the same optimization parameters as for  $\omega$ , there could even be actually a decrease of the maximum harmonic signal by a factor of 2. However, as the spectral content is doubled (and as the harmonic spectral width is similar), the whole energy seems to be conserved.

Due to this gas type dependence, the effect of flux increase can significantly vary in the observed full spectral range. In other words, the high efficiency of this two-colour process at short wavelengths notably compensates the low efficiency of the classical harmonic generation in this range. Consequently, it extends the spectral region accessible for applications and seeding to shorter wavelengths (figure 3(a)).

Basically, compared to the standard reference of harmonic generation in Ar, the Ne signal obtained with the  $\omega + 2\omega$  technique is on the same order of intensity (figure 3(b)). Importantly, the enhancement of the Ne signal mainly occurs between 30 and 20 nm, where typically classical HH generated from an 800 nm laser has a nearly negligible intensity, as this spectral region is located after the cut-off of Ar gas and before the efficient spectral range of Ne. Even more, accounting for the Al filter behaviour below 17 nm (transmission about  $10^{-4}$ , figure 1(c)) and extrapolating the extension of the intensity decrease trend (figure 3(a)), it appears that a strong signal at 13 nm could have been extracted by using zirconium filters, whose transmission is quite important below 20 nm, instead of by using aluminium filters.

In summary, we observed here that using different harmonic generation techniques (either  $\omega + 2\omega$  or  $\omega$  only), BBO thicknesses, and types of gas, an almost constant HH signal could be achieved from 65 to 13 nm. Besides, the required fine tuneability between one harmonic and another, which can be satisfied using either frequency-mixing [32] or laser chirp [33, 34]



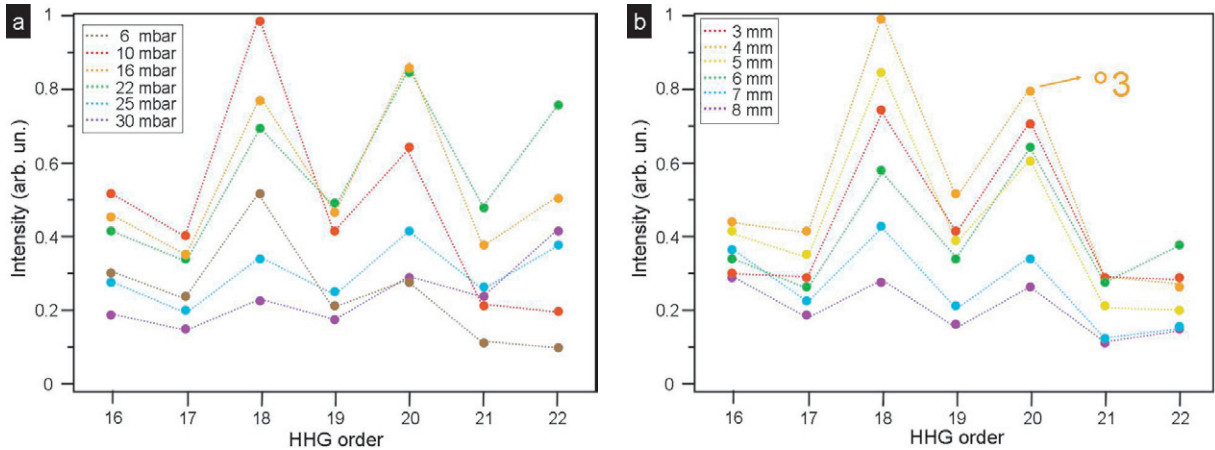
**Figure 3.** Intensity HH spectra obtained with either  $\omega$  or  $\omega+2\omega$  technique (100  $\mu\text{m}$  thick BBO crystal) and with same optimization parameters as for  $\omega$ :  $E_\omega = 6 \text{ mJ}$ ,  $L_C = 7\text{--}9 \text{ mm}$  and  $P_G = 30\text{--}35 \text{ mbar}$ . Xe and Ar cases:  $\phi = 20 \text{ mm}$ ,  $I_\omega \approx 1.2 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  for  $\omega$  configuration, and  $I_\omega \approx 0.78 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ ,  $I_{2\omega} \approx 0.59 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  for  $\omega+2\omega$  configuration. Ne and He cases:  $\phi = 40 \text{ mm}$ ,  $I_\omega \approx 7 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  for  $\omega$  configuration, and  $I_\omega \approx 4.5 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ ,  $I_{2\omega} \approx 3.4 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  for  $\omega+2\omega$  configuration. (a) Schematic representation of the achieved experimental intensity for different gases with both techniques (logarithmic scale). The presented curves match the fitted envelope of the recorded spectra. The light-blue window corresponds to the spectral part where the aluminium transmission is about  $10^{-4}$ . Then, the black line represents the extrapolation of the extension of the intensity decrease trend below 17 nm. The green cross symbols show the corresponding estimations of the 13 nm signal. (b) Zoom of (a) around 30 nm. Ne with  $\omega+2\omega$  and Ar with  $\omega$  (linear scale). The curves which are presented several times in the different figures are marked with a ‘°’ symbol in order to be recognized.

techniques, is two times smaller, due to the double harmonic content. Also, for higher orders, the needed tuneability is less important as harmonics start to dominate. A two-colour harmonic generation experiment using sub-10 fs IR laser [35] has even been demonstrated with argon gas a continuum of radiations from 25 to 33 nm, equivalent to the distance between four odd harmonics in the standard scheme using a typical 20–35 fs FWHM IR laser. Thus, the two-colour harmonic generation scheme is an appropriate solution for seeding PSXL and FEL in this very large spectral range, and furthermore it would allow the FEL tuneability to be maintained.

#### 4. Optimization of the flux

Since the two-colour harmonic generation process is different from the standard one at the fundamental frequency (short electron path selection and higher ionization rate), the optimal parameters for the two cases have to be notably different. Actually, it even corresponds to quite drastic changes. For instance, figure 4 presents the Ar example. For optimizing the HH flux, both





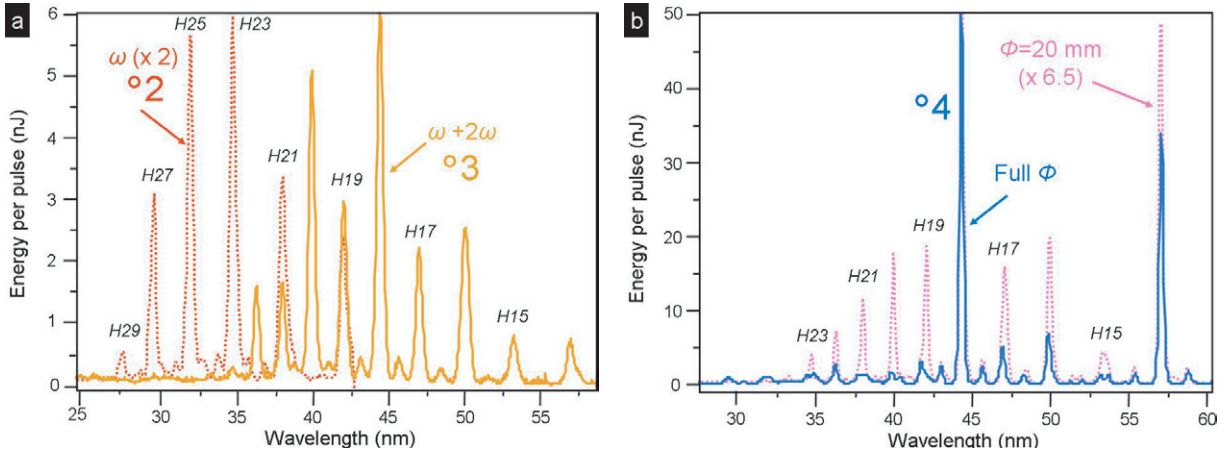
**Figure 4.** Representation of the intensity maxima (dot symbols) of the HH orders obtained in Ar with the  $\omega + 2\omega$  technique (100  $\mu\text{m}$  thick BBO crystal), full aperture beam ( $\phi = 40$  mm) and  $E_\omega = 5.2$  mJ.  $I_\omega \approx 3.9 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ ,  $I_{2\omega} \approx 2.9 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ . The curves correspond to the fitted envelope of the recorded spectra. (a) Variation of the gas pressure in a 6 mm long gas cell. (b) Variation of the cell length under constant pressure of 16 mbar. The curves which are presented several times in the different figures are marked with a ‘o’ symbol in order to be recognized.

the gas pressure and the cell length are approximately two times smaller, respectively, from 30 to 16 mbar and 8 to 4 mm.

The recorded spectrum resulting from these optimal mixing parameters is plotted in figure 5(a) in order to be compared to the classical harmonic generation one. It shows that even with a gas like argon, which is relatively efficient in the classical harmonic generation, a reasonable enhancement can be obtained (factor of 2), as lower pressure and smaller propagation length in the cell involve in the case of argon smaller absorption in the 40–70 nm range. Spectra from figure 4 also reveal that the magnification mainly occurs for some particular orders, i.e. for both types of even orders. Especially, the most visible evolution stands for the 18th and 20th orders corresponding to 44 and 40 nm.

In addition to the gas pressure and cell length optimization, stronger enhancement is reached when increasing the laser energy for generation, i.e. by directly increasing the available energy at the exit of the compressor ( $E_\omega$ ) and/or by opening the iris aperture further ( $\phi$ ). With the best optimization case, an enhancement factor of the HH yield equal to 20 is then observed compared to the classical harmonic generation (blue curve of figure 5(b) and red curve of figure 5(a)). However, the intensification essentially takes place in the  $2 \times (2n + 1)$  components of the even orders (figure 5(b)), while complementary components saturate ( $2 \times (2n)$ ). These  $2 \times (2n + 1)$  components are the orders that can be generated by the  $2\omega$  component alone, whose intensity is stronger now. Indeed, higher laser energy leads to higher conversion in the crystal and still even higher blue intensity as the focal spot is smaller than the IR one.

This clearly means that in a two-colour field harmonic generation configuration, both IR and blue beams have to be intense to reach the highest HH yield and as a consequence higher laser energy than in a single-colour configuration is required. This is why, as in our current

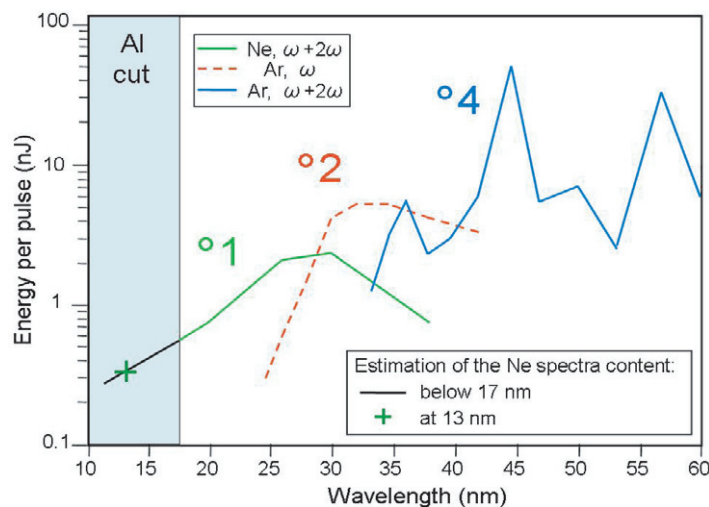


**Figure 5.** HH spectra calibrated in energy per pulse and obtained in Ar with either  $\omega$  ( $L_C = 8$  mm and  $P_G = 30$  mbar) or  $\omega + 2\omega$  (100  $\mu$ m thick BBO crystal,  $L_C = 4$  mm and  $P_G = 16$  mbar) technique, for different laser energies and iris apertures. H14 to H29 correspond to the harmonic orders. (a) Full aperture beam ( $\phi = 40$  mm).  $E_\omega = 6$  mJ,  $I_\omega \approx 1.2 \times 10^{14}$  W cm $^{-2}$  for  $\omega$  configuration and  $E_\omega = 5.2$  mJ,  $I_\omega \approx 3.9 \times 10^{14}$  W cm $^{-2}$ ,  $I_{2\omega} \approx 2.9 \times 10^{14}$  W cm $^{-2}$  for  $\omega + 2\omega$  configuration. (b)  $\omega + 2\omega$ ,  $E_\omega = 6.8$  mJ and either  $\phi = 40$  mm ( $I_\omega \approx 4.4 \times 10^{14}$  W cm $^{-2}$ ,  $I_{2\omega} \approx 5.4 \times 10^{14}$  W cm $^{-2}$ ) or  $\phi = 20$  mm ( $I_\omega \approx 0.77 \times 10^{14}$  W cm $^{-2}$ ,  $I_{2\omega} \approx 0.94 \times 10^{14}$  W cm $^{-2}$ ). The curves which are presented several times in the different figures are marked with a '°' symbol in order to be recognized.

harmonic generation geometry, the intensity is limited by a rather long focal length lens (1.5 m), such an additional effect of yield enhancement on the  $2 \times (2n + 1)$  components of the even orders could not have been observed for gases like He and Ne for which ionization potentials are higher than for Ar, Kr and Xe.

The significant drawback of the whole optimization method, aiming at maximizing the harmonics flux generated in the mixing, is the induced strong redshift. Indeed, as the gas pressure decreases (figure 4(a)) and as the laser energy increases (figure 5(b)), the harmonics shift to lower orders. This also comes from the higher blue component taking part in the generation process (equations (2) and (3)) in that case. Indeed, this explains both the strong redshift and the enhancement of the  $2 \times (2n + 1)$  orders first observed by the role of the iris aperture and laser energy scaling (figure 5(b)) and is confirmed by the observation of similar effects when using lower laser energy but a thicker BBO crystal (250  $\mu$ m, not shown here), giving in all cases a higher blue component. Moreover, the whole behaviour exactly corresponds to that suggested by simulations performed with neon gas in [29] with variable  $2\omega$  intensity.

To finally quantify more clearly the HH yield, the energy per pulse has been calibrated in absolute with the solarblind photodiode. It leads to a quite similar result to calculating the global efficiency of the spectrometer and taking into account the experimental filter transmission ( $\approx 5\%$ ) and theoretical spherical mirror reflectivity ( $\approx 75\%$ ). In our two-colour arrangement, the maximum number of photons per shot reached with Ar gas is about  $10^{10}$  at 44 nm and corresponds to 50 nJ (figure 5(b), figure 6). As previously mentioned, in



**Figure 6.** Schematic representation in the spectral window adapted for the seeding of the highest experimental HH energies per pulse achieved in various conditions (logarithmic scale). The light-blue window corresponds to the spectral part where the aluminium transmission is about  $10^{-4}$ . Then, the black line represents the extrapolation of the extension of the intensity decrease curvature below 17 nm. The green cross symbols show the corresponding estimations of the 13 nm signal.  $\omega$ : typical Ar reference ( $\phi = 20$  mm,  $I_\omega \approx 1.2 \times 10^{14}$  W cm $^{-2}$ ).  $\omega + 2\omega$ : Ne ( $\phi = 20$  mm,  $I_\omega \approx 4.5 \times 10^{14}$  W cm $^{-2}$ ,  $I_{2\omega} \approx 3.4 \times 10^{14}$  W cm $^{-2}$ ) and Ar ( $\phi = 40$  mm,  $I_\omega \approx 4.4 \times 10^{14}$  W cm $^{-2}$ ,  $I_{2\omega} \approx 5.4 \times 10^{14}$  W cm $^{-2}$ ). The curves which are presented several times in the different figures are marked with a ‘ $\circ$ ’ symbol in order to be recognized.

such a rather long focusing geometry, the intensity of the fundamental and second harmonic is not high enough in the case of He and Ne gases. This is why with a slightly higher energy laser, one can expect to get harmonics from Ne, particularly the  $2 \times (2n + 1)$  components of the even orders, with almost one order of magnitude higher energy per pulse than measured here.

## 5. A source for seeding FEL or PSXL

Suitable and, above all, intense HH sources are urgently needed in the VUV to the soft x-ray region for seeding. In an FEL, first a non negligible seed intensity is required to overcome the shot noise of the electron beam, which grows stronger at shorter wavelengths, and second a high intensity seed helps to obtain saturation in a more compact system [8]. Although PSXL seeding has already been performed below 30 nm, the injected seed energies were so limited (tens of picojoules) that the amplified beam energies did not attain more than 100 nJ [3, 5, 6]. This is why the  $\omega + 2\omega$  technique applied for the seeding of FEL and PSXL is very promising.

For example, in the present two-colour experiment, three wavelength regions suitable for seeding are emphasized, around 44 nm, from 26 to 18 nm and 13 nm, in which harmonic yields are compared in terms of intensity to the classical Ar reference with  $\omega$  only at 32–35 nm. Table 1 summarizes, in particular, the values of the energy per pulse which have been experimentally measured ( $E_{\text{HH, meas.}}$ ) in our kHz two-colour harmonic generation setup (figure 6): 50 nJ at 44 nm, 2.5 nJ at 26 nm, 0.65 nJ at 18 nm and 0.3 nJ at 13 nm while 5 nJ is reached for the reference.

**Table 1.** Summary of harmonics energy per pulse at the generation point, coming from either experimental measurements in the current setup ( $E_{\text{HH, meas.}}$ ), or from estimations in a long focal geometry setup ( $E_{\text{HH, l.f.}}$ ).  $E_{\text{inj., l.f.}}$  corresponds to the real injected energy per pulse (i.e. after the seeding optics) ‘seen’ by the amplification medium and which could be obtained in the long focal geometry.

Technique	Gas type	$\lambda$ (nm)	$E_{\text{HH, meas.}}$ (nJ)	$E_{\text{HH, l.f.}}$ (nJ)	$E_{\text{inj., l.f.}}$ (nJ)
$\omega$ (reference)	Ar	32–35	5	500	50
$\omega + 2\omega$	Ar	44	50	5000	500
$\omega + 2\omega$	Ne	26	2.5	250	25
$\omega + 2\omega$	Ne	18	0.65	65	6.5
$\omega + 2\omega$	Ne	13	$\approx 0.3$	$\approx 30$	$\approx 3$

For the seeding of FEL, these energy levels are delicate; such measured values are basically high enough down to 20 nm but not for shorter wavelengths due to technical and physics issues. Firstly, as an efficient spatial overlap is required between either the electron beam bunches and the seed, appropriate optics, which softly attenuate the seed energy, have to be added in order to control the refocusing and the alignment of the HH beam in the electron medium. Using a restricted number of grazing incidence reflective optics, this reduction will be limited most likely to less than one order of magnitude. Secondly, the injected peak power must overcome the electron beam shot noise, which is inversely proportional to the wavelength of emission, and which is as a consequence rather high at wavelengths lower than 20 nm, while the HH seed energy starts to decrease fast (figure 6).

The solution could come from the combination of the two-colour scheme with an additional well-known harmonic generation technique allowing the increasing of the harmonics flux. Indeed, with higher laser energy and longer focal length geometry (5–7 m), the general high harmonic efficiency could be enhanced; a typical energy per pulse of around 500 nJ at 32–35 nm could be engaged for [36]. Consequently, coupling such a focusing geometry to a  $\omega + 2\omega$  setup would allow photons with 5  $\mu\text{J}$  energy per pulse to be generated at 44 nm, 250 nJ at 26 nm, 65 nJ at 18 nm and about 30 nJ at 13 nm (table 1,  $E_{\text{HH, l.f.}}$ ). Maintaining the conservative value of global transmission for the seeding optics, the real energies per pulse available for seeding would be in that case: 0.5  $\mu\text{J}$  at 44 nm, 25 nJ at 26 nm, 6.5 nJ at 18 nm and 3 nJ at 13 nm (table 1,  $E_{\text{inj., l.f.}}$ ).

Following [25], in order to overcome the electron beam shot noise in the 44–13 nm (maximum of 10 W peak power at 13 nm) region, and observe fully coherent FEL emission, the seed energy (for a 50 fs FWHM pulse duration) must be close to  $1 \text{ nJ} = 50 \text{ fs} \times 10 \text{ W} \times 200$  (factor for coherent amplification)  $\times 10$  (spatial overlap with the electron beam). Therefore, seeding down to 13 nm, as scheduled by the sFLASH team, is clearly feasible with the implementation of a two-colour setup in a long focal geometry, and which could deliver 3 nJ in the active medium. According to figures 3(a) and 6, this should not be obtained with a standard HH setup for Ne gas, as the real energy per pulse at 13 nm would be restricted to approximately 0.05 nJ (about 6.5 times lower than that obtained with  $\omega + 2\omega$ , i.e. 0.3 nJ). Basically, in classical harmonic generation the shortest wavelength accessible for observing coherent amplification in FEL seeding is about 30 nm using Ar gas.

These levels of energy are relatively important for other applications in general and suitable for seeding experiments of PSXL down to 18 nm, which do not require very high seed intensity.

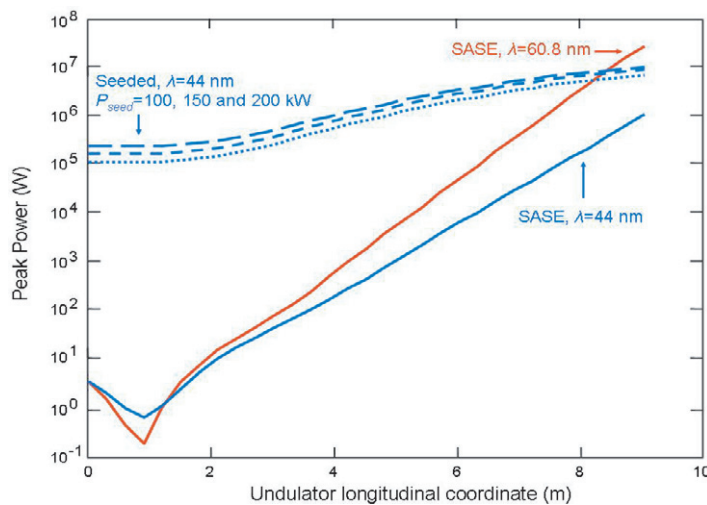
Indeed, the injected beam must overcome rather weak levels of ASE, whose amplitudes are not really sensitive to the wavelength of the emission. Saturated emission in seeding configuration has been first observed while the seed energy was equal to 35 nJ at 32.8 nm [1]. But 0.35 nJ was enough in the same installation for getting high amplification in a well-defined spatial mode. Then at 18.9 nm only 0.2 nJ [5] to 1 nJ [3] allowed one to obtain a strong amplification factor ( $\times 400$ ).

A number of PSXL could then benefit from the elevated harmonic flux, especially in the 26–18 nm region: Ne-like Ni (23.14 nm), Se (20.5 nm) and Ge (19.63 nm), Ni-like Y (24.03 nm), Zr (22.07 nm) and Nb (20.47 nm). Indeed, even in our relatively short focusing geometry system (1.5 m) and with a conservative reduction factor of 10 for the HH propagation to the plasma, the available seed energy per pulse around 18 nm reaches 65 pJ (0.65 nJ/10, table 1), which is of the order of the value reported with a 5 m long focal lens in the Ni-like Mo seeding experiment ( $< 0.2$  nJ) [5]. As a consequence, combination with long focal geometry would lead to the use of larger plasmas and/or shorter amplification lengths in order to reach the saturation faster and possibly also extracting more energy, leading to an unprecedented high peak spectral brightness close to the FEL one. Seeding experiments at 13 nm, which have been developed thanks to very high reflective optics for lithography, could easily be realized for instance in the Ni-like Ag (13.9 nm) and the Ni-like Cd (13.2 nm). Even at shorter wavelengths, the seed energy would be kept large enough to observe amplification ( $< 3$  nJ,  $E_{\text{inj.,l.f.}}$ , table 1). Finally, the critical spectral overlap, which requires drastic changes of the laser chirp (leading to lower HH efficiency and larger pulse durations) as the wavelength of emission of a PSXL is fixed (contrary to FEL devices), is easier to perform in a two-colour harmonic generation configuration due to the double harmonic content.

Seeding could also help to saturate the FEL signal at shorter wavelengths than in the SASE mode (figure 7). For instance, the SCSS Test Accelerator delivers a certain photon flux from 30 nm to more than 60 nm [11], but the full saturation only occurs starting from 55 nm. At 44 nm, the FEL intensity is reduced by a factor of 20, far from the saturation, which increases the shot to shot instability by 3 to about 30%. Figure 7 presents simulated evolutions, performed with the 1D code Perseo Time Dependent [37], of the peak power in the 9 m long FEL amplification device, the undulator.

It shows that full saturation is obtained at 44 nm in seeding configuration while the HH seed peak power is employed (based on our experimental results); 150 kW corresponding to 5 nJ energy (50 nJ measured at 44 nm with the one order of magnitude reduction factor accounting for global transmission of seeding optics) in a 35 fs FWHM pulse is restrained in such a condition of short focal lens geometry. But, more than getting higher flux at a shorter wavelength, seeding with HH also aims at improving the spectral and intensity stabilities. If the first one has been well established [38], the second one is more challenging as the sources of instability implying that FEL shot to shot intensity variations are diverse in the seeding scheme, such as the intensity and the wavelength of emission of the harmonic pulses, and the temporal and spatial overlaps with the electron beam. Among these, the main technical issue is the required femtosecond synchronization. But if this is achieved, then the major component of instability is the seed intensity fluctuation, which is directly linked to the high nonlinearity of the harmonic generation process and as a consequence is difficult to keep small. In special conditions of relatively long electron beam pulses, like the case of the SCSS Test Accelerator (1 ps FWHM), and with the usual 50 fs of temporal jitter standing for a HH pulse of 35 fs (FWHM), the induced intensity fluctuations would be quite small, 2.6%.





**Figure 7.** Simulated evolution of the FEL peak power signal as a function of the amplification device (undulator) length in SASE (classical mode) and seeding configurations with harmonics for fundamental radiated wavelengths ( $\lambda$ ) of 60.8 nm and 44 nm. The calculations have been made using the Perseo Time Dependent code with the following parameters from [11]. Electron beam parameters: (energy)  $E = 250$  MeV, (slice energy spread)  $\sigma_E = 3 \times 10^{-4}$ , (peak current)  $I = 300$  A, (charge)  $q = 0.32$  nC and (slice emittance)  $\epsilon = 0.7$  mm mrad. Undulator parameters: (spatial period)  $\lambda_U = 15$  mm, (number of periods)  $N = 2 \times 300$ , (deflection parameter)  $K_{60.8 \text{ nm}} = 1.37$  or  $K_{44 \text{ nm}} = 0.9$ . Seed parameters: (seeding wavelength)  $\lambda_{\text{seed}} = 44.09$  nm, (peak power)  $P_{\text{seed}} = 150 \text{ kW} \pm 33\%$ , (pulse duration)  $\tau = 35$  fs FWHM. For  $P_{\text{seed}} = 100 \text{ kW}$ , the temporal centroid positions of the HH pulse and electron bunch are shifted by 50 fs.

Furthermore, even when adding relatively strong harmonic intensity variations, typically 30%, variations would remain smaller than in the best SASE conditions, i.e. less than 10% (figure 7,  $P_{\text{seed}} = 150 \text{ kW} \pm 33\%$ ).

Finally, in combination with the possibility of controlling the high harmonic spectra with the two-colour technique (regulation of the injected amount of seed at the desired wavelength), seeding will provide users with a quite stable light, not only at the designed FEL wavelength, but within a much larger range towards the soft x-ray region. This experimental proposal is obviously applicable for other future FEL devices for generating SASE light in the soft x-ray region as long as a strong harmonic signal is produced, which overcomes the shot noise.

## 6. Conclusions and perspectives

The two-colour scheme, implemented on our kHz HH line, has allowed us to extensively study both spectral and intensity evolutions of the double content harmonic spectra, with typical parameters such as the type of gas, the gas pressure, the cell length as well as the intensity of the 400 nm component. It has been shown that either a limited magnification of the whole spectrum is obtained with optimization parameters close to the  $\omega$  ones, a more significant increase of

both types of even harmonics with twice smaller cell length and gas pressure, or finally a very strong enhancement is mainly located on the  $2 \times (2n + 1)$  components due to a higher 400 nm component. Nevertheless, this final step occurs at higher wavelengths. This is why the adaptation of the  $\omega + 2\omega$  technique for seeding experiments requires a strong control of the generation, in order to keep the redshift effect small but still obtain as many photons as possible at the selected wavelength. As pointed out before, in our current very simple  $\omega + 2\omega$  setup with BBO crystal directly in the laser path, the IR and blue components are slightly delayed due to the group delay dispersion difference, which prevent BBO crystals thicker than  $250 \mu\text{m}$  being used. Moreover, the intensity ratio of these two pulses cannot be well adjusted as changing the energy of the laser beam directly affects the blue one. These issues could be solved with two separate lines for  $\omega$  and  $2\omega$  [39], which are then recombined in the gas medium. Yet, in that case the spatial matching of the two beams would be more delicate.

Basically, the two-colour harmonic generation configuration brought very promising results for seeding FEL or PSXL in the VUV to the soft x-ray domain. Indeed, as this method was here revealed to be more and more efficient at shorter wavelengths, it significantly compensates the standard harmonic generation performance, giving an almost constant number of photons in this range, and as a consequence seeding at shorter wavelengths than previously accessible can be envisaged. In addition, the evidence of the strong enhancement in argon on the  $2 \times (2n + 1)$  components, and especially at 44 nm, associated with the possibility to control the spectra could, for instance, serve to extend the SCSS Test Accelerator FEL saturation to shorter wavelengths and deliver more stable light for applications. Finally, the strong HH strengthening demonstrated in the 27–13 nm range is an essential result for the future soft x-ray seeded FEL sFLASH, and also for the tremendous number of PSXL available in this range.

To conclude, in order to attain x-ray radiation (from 10 to 0.01 nm), the use of higher fundamental wavelength lasers, such as parametric amplifiers ( $1.2\text{--}1.5 \mu\text{m}$  [26]), is foreseen. Indeed, according to equations (2) and (3), this would correspond to a strong blueshift of the cut-off region. Coupled to the two-colour strong yield increasing effect observed in Ne or He gases, intense HH pulses could be generated in such a spectral region for both FEL and PSXL seeding. The so-called water-window ( $\approx 2\text{--}4 \text{ nm}$ ), of interest for the study of biological samples, and perhaps even the Angström region (0.1 nm) could be then reached.

## Acknowledgments

CPH acknowledges support from the Laserlab Integrated Infrastructures Initiative RII-CT-2003-506350. Financial support for this work was provided by the TUIXS European project (Table top Ultra Intense XUV Sources) FP6 NEST-Adventure n.012843.

## References

- [1] Zeitoun P *et al* 2004 *Nature* **431** 426
- [2] Kawachi T *et al* 2005 *Proc. JAERI* vol 1 (Bellingham, WA: International Society for Optical Engineering) p 5919
- [3] Wang Y *et al* 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 3901
- [4] Goddet J-Ph *et al* 2007 *Opt. Lett.* **32** 1498–1500
- [5] Wang Y *et al* 2008 *Nat. Photonics* **2** 94
- [6] Pedaci F *et al* 2008 *Opt. Lett.* **33** 491–3

- [7] McNeil B W J *et al* 2007 *New J. Phys.* **9** 82
- [8] Lambert G *et al* 2008 *Nat. Phys.* **889** 296
- [9] Salières P, L’Huillier A and Lewenstein M 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 3776
- [10] Le Déroff L *et al* 2000 *Phys. Rev. A* **61** 043802
- [11] Shintake T *et al* 2008 *Nat. Photonics* **2** 555
- [12] Labat M *et al* 2007 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **593** 26
- [13] Schlarb H *et al* 2007 *Proc. FEL’07 Conf.* vol 1 (JACOW) p 211
- [14] Tiedtke K *et al* 2009 *New J. Phys.* **11** 023029
- [15] <http://www.elettra.trieste.it/FERMI/>
- [16] Brandin M *et al* 2008 *J. Phys.: Conf. Ser.* **100** 022001
- [17] <http://www.sparx-fel.it/>
- [18] Couprie M-E *et al* 2008 *Proc. EPAC’08 Conf.* vol 1 (JACOW) p 73
- [19] Reiche S 2008 *Workshop Lausanne*
- [20] Yu L H *et al* 2000 *Science* **289** 932
- [21] Dattoli G and Ottaviani P L 1999 *J. Appl. Phys.* **86** 5331
- [22] Giannessi L and Musumeci P 2006 *New J. Phys.* **8** 294
- [23] Bonifacio R, Pellegrini C and Narducci L 1984 *Opt. Commun.* **50** 373
- [24] Saldin E L, Schneidmiller E A and Yurkov M V 1998 *Opt. Commun.* **148** 383
- [25] Lambert G *et al* *Phys. Rev. Lett.* submitted
- [26] Shan B, Cavalieri A and Chang Z 2002 *Appl. Phys. B* **74** 23
- [27] Watanabe S, Kondo K, Nabekawa Y, Sagisaka A and Kobayashi Y 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 2692
- [28] Kim I J, Lee G H, Park S B, Lee Y S, Kim T K and Nam C H 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 021125
- [29] Kim C M, Kim I J and Nam C H 2005 *Phys. Rev. A* **72** 033817
- [30] <http://www-cxro.lbl.gov/>
- [31] Kazamias S *et al* 2002 *Eur. Phys. J. D* **21** 353
- [32] Eichmann H *et al* 1995 *Phys. Rev. A* **51** 3414
- [33] Lee D G 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 243902
- [34] Mauritsson J *et al* 2004 *Phys. Rev. A* **70** 021801
- [35] Oishi Y, Kaku M, Suda A, Kannari F and Midorikawa K 2006 *Opt. Express* **14** 7230
- [36] Takahashi E, Nabekawa Y, Otsuka M and Midorikawa K 2002 *Phys. Rev. A* **66** 021802
- [37] Giannessi L 2006 *Proc. FEL’06 Conf.* vol 1 (JACOW) p 91
- [38] Hara T *et al* 2008 *Proc. FEL’08 Conf.* vol 1 (JACOW)
- [39] Eichmann H *et al* 1995 *Phys. Rev. A* **51** R3414









# Bibliographie

- 
- 1 Ph. Zeitoun, G. Faivre, S. Sebban, T. Mocek, A. Hallou, M. Fajardo, D. Aubert, Ph. Balcou, F. Burgy, D. Douillet, S. Kazamias, G. De Lachèze-Murel, T. Lefrou, S. Le Pape, P. Mercère, H. Merdji, A.S. Morlens, J.P. Rousseau et C. Valentin. "A high-intensity highly coherent soft x-ray femtosecond laser seeded by a high harmonic beam". *Nature*. 431, p. 426, (2004).
  - 2 G. Faivre. "Étude expérimentale et numérique d'un laser X-UV injecté par des Harmoniques". Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique, (2007).
  - 3 J. M. J. Madey. "Stimulated Emission of Bremsstrahlung in a periodic magnetic field". *Jour. Appl. Phys.*, 42, 1906, (1971).
  - 4 D. G. Deacon, L. R. Elias, J. M. J. Madey, G. J. Ramian, H. A. Schwettman et T. I. Smith. "First operation of a free electron laser". *Phys. Rev. Lett.*, 38: 892, (1977).
  - 5 G. Lambert. "Harmoniques cohérentes du laser à électrons libres générées à partir d'harmoniques produites dans les gaz sur le prototype de l'accélérateur SCSS". Thèse de doctorat, Université Paris XI, Orsay, (2008).
  - 6 K. J. Kim et M. Xie. "Self-amplified spontaneous emission of short wavelength coherent radiation". *Nucl. Instrum. Methods A*, 331: 359, (1993).
  - 7 W. Ackermann, G. Asova, V. Ayvazyan, A. Azima, N. Baboi, J. Bähr, V. Balandin, B. Beutner, A. Brandt, A. Bolzmann, R. Brinkmann, O. I. Brovko, M. Castellano, P. Castro, L. Catani, E. Chiadroni, S. Choroba, A. Cianchi, J. T. Costello, D. Cubaynes, J. Dardis, W. Decking, H. Delsim-Hashemi, A. Delserieys, G. Di Pirro, M. Dohlus, S. Düsterer, A. Eckhardt, H. T. Edwards, B. Faatz, J. Feldhaus, K. Flöttmann, J. Frisch, L. Fröhlich, T. Garvey, U. Gensch, Ch. Gerth, M. Görler, N. Golubeva, H.-J. Grabosch, M. Grecki, O. Grimm, K. Hacker, U. Hahn, J. H. Han, K. Honkavaara, T. Hott, M. Hüning, Y. Ivanisenko, E. Jaeschke, W. Jalmuzna, T. Jezynski, R. Kammering, V. Katalev, K. Kavanagh, E. T. Kennedy, S. Khodyachykh, K. Klose, V. Kocharyan, M. Körfer, M. Kollwe, W. Koprek, S. Korepanov, D. Kostin, M. Krassilnikov, G. Kube, M. Kuhlmann, C. L. S. Lewis, L. Lilje, T. Limberg, D. Lipka, F. Löh, H. Luna, M. Luong, M. Martins, M. Meyer, P. Michelato, V. Miltchev, W. D. Möller, L. Monaco, W. F. O. Müller, O. Napieralski, O. Napoly, P. Nicolosi, D. Nölle, T. Nuñez, A. Oppelt, C. Pagani, R. Paparella, N. Pchalek, J. Pedregosa-Gutierrez, B. Petersen, B. Petrosyan, G. Petrosyan, L. Petrosyan, J. Pflüger, E. Plönjes, L. Poletto, K. Pozniak, E. Prat, D. Proch, P. Pucyk, P. Radcliffe, H. Redlin, K. Rehlich, M. Richter, M. Roehrs, J. Roensch, R. Romaniuk, M. Ross, J. Rossbach, V. Rybnikov, M. Sachwitz, E. L. Saldin, W. Sandner, H. Schlarb, B. Schmidt, M. Schmitz, P. Schmüser, J. R. Schneider, E. A. Schneidmiller, S. Schnepf, S. Schreiber, M. Seidel, D. Sertore, A. V. Shabunov, C. Simon, S. Simrock, E. Sombrowski, A. A. Sorokin, P. Spanknebel, R. Spesyvtsev, L. Staykov, B. Steffen, F. Stephan, F. Stulle, H. Thom, K. Tiedtke, M. Tischer, S. Toleikis, R. Treusch, D. Trines, I. Tsakov, E. Vogel, T. Weiland, H. Weise, M. Wellhöfer, M. Wendt, I. Will, A. Winter, K. Wittenburg, W. Wurth, P. Yeates, M. V. Yurkov, I. Zagorodnov et K. Zapfe. "Operation of a free-electron laser from the extreme ultraviolet to the water window". *Nature Photonics* 1: 336-342, (2007).

- 8 [http://hasylab.desy.de/news\\_\\_events/](http://hasylab.desy.de/news__events/)
- 9 L. Giannessi, L. Poletto, G. Tondello, S. De Silvestri, M. Nisoli, G. Sansone, S. Stagira, P. Musumeci, M. Petrarca, M. Mattioli, M. Labat, O. Tcherbakoff, M. Bougeard, B. Carré, D. Garzella, G. Lambert, H. Merdji, P. Salières, M. E. Couprie, D. Alesini, M. Biagini, R. Boni, M. Castellano, A. Clozza, A. Drago, M. Ferrario, A. Gallo, A. Ghigo, M. Migliorati, L. Palumbo, C. Sanelli, F. Sgamma, B. Spataro, S. Tommasini, C. Vaccarezza, C. Vicario, V. Fusco, L. Serafini, S. Ambrogio, F. Ciocci, G. Dattoli, A. Doria, G. P. Gallerano, L. Giannessi, E. Giovenale, I. Spassovsky, M. Quattromini, A. Renieri, C. Ronsivalle, A. Dipace et E. Sabia. "Future Seeding Experiments at SPARC". Proceedings FEL 2006, on JACOW: 95, (2006).
- 10 T. Shintake, H. Kitamura et T. Ishikawa. "X-ray FEL project at Spring-8 Japan". Proceedings of the 2003 SRI conference, AIP 705: 117, (2004).
- 11 R. Brinkmann. "The European XFEL project". Proceedings FEL 2006, on JACOW: 24, (2006).
- 12 P. Emma. "Initial Commissioning Experience with the LCLS Injector". Proceedings PAC 2007, on JACOW: 1302, (2007).
- 13 S. Kazamias-Moucan. "Optimisation d'une source d'harmoniques d'ordres élevés pour l'optique non-linéaire dans l'extrême UV". Thèse de doctorat, Ecole polytechnique, (2003)
- 14 O. Boyko. "Optimisation d'une source d'harmoniques d'ordre élevé par contrôle actif du générateur". Thèse de doctorat, Ecole polytechnique, (2007)
- 15 E. J. Takahashi, T. Kanai, K. L. Ishikawa, Y. Nabekawa et K. Midorikawa. «Coherent Water Window X Ray by Phase-Matched High-Order Harmonic Generation in Neutral Media” , PRL 101, 253901, (2008)
- 16 P. Salière, L. Le Deroff, B. Carré, D. Joyeux et D. Phalippou. "Measurement of spatial coherence of high order harmonics using a Fresnel bi-mirror interferometer", Phys. Rev. A. 61, p. 043802, (2000).
- 17 R. Lichters, J. Meyer-Ter-Vehn et A. Pukhov. "Short-Pulse laser harmonics from oscillating plasma surfaces driven at relativistic intensity ". Phys. Plasma 3, 769, 3425, (1996)
- 18 C. Thauray, F. Quéré, J.-P. Geindre, A. Levy, T. Ceccotti, P. Monot, M. Bougeard, F. Réau, P. d'Oliveira, P. Audebert, R. Marjoribanks et Ph. Martin. "Plasma mirrors for ultrahigh-intensity optics", Nature Physics 3, 424-429, (2007).
- 19 P. Monot, G. Doumy, S. Dobosz, M. Perdrix, P. D'Oliveira, F. Quéré, F. Réau, Ph. Martin, P. Audebert, J.-C. Gauthier et J.-P. Geindre, "High-order harmonic generation by nonlinear reflection of an intense high-contrast laser pulse on a plasma", Optics Letters 29, 893-895, (2004).
- 20 L.A. Shelepin, L.I. Gudzenko, Sov. Phys. Dokl. 28, p.449, (1965).
- 21 G. Jamelot, P. Jaeglé, A. Carillon, A. Sureau et M. Cukier, "Experimental evidence for the possible existence of a stimulated emission in the extreme UV range". Phys. Lett., 36 A, p. 167-168, (1971).
- 22 D. Jacoby, G. J. Pert, S. A. Ramsden, L. D. Shorrock, et G. J. Tallents, "Observation of gain in a possible extreme ultraviolet lasing system". Opt. Commun. 37, 193, (1981).
- 23 S. Suckewer, C.H. Skinner, H. Milchberg, C. Keane et D. Voorhes, "Amplification of simulated soft x-ray emission in a confined plasma column", Phys. Rev. Lett. 55, p. 1753, (1985).
- 24 C.H. Skinner, S. Suckewer, D. Kim, E. Valeo, D. Voorhes et A. Wouters, "Divergence measurements of soft-X-ray laser beam", Phys. Rev. Lett. 57, p. 1004, (1986).

- 25 Y. Nagata, K. Midorikawa, S. Kubodera, M. Obara, H. Tashiro et K. Toyoda, "Soft-x-ray amplification of the Lyman- $\alpha$  transition by optical-field-induced ionization", *Phys. Rev. Lett* 71, 3774, (1993).
- 26 C. D. Decker, D.C. Eber et R.A. London, "Ionization-induced refraction in recombination x-ray lasers", *Phys. Plasmas* 3, 414 (1996)
- 27 R. C. Elton. "Extension of 3p-3s ions lasers into the vacuum ultraviolet region", *Applied Optics*, 14: 97–101, (1975).
- 28 D. L. Matthews, P. L. Hagelstein, M. D. Rosen, M. J. Eckart, N. M. Ceglio, A. U. Hazi, H. Medeck, B. J. MacGowan, J. E. Trebes, B. L. Whitten, E. M. Campbell, C. W. Hatcher, A. M. Hawryluk, R. L. Kauffman, L. D. Pleasance, G. Rambach, J. H. Scofield, G. Stone et T. A. Weaver. "Demonstration of a soft x-ray amplifier", *Phys. Rev. Lett.*, 54(2):110–113, (1985).
- 29 L.B. Dasilva B.J. Macgowan, D.J. Fields, C.J. Keane, J.A. Koch, R.A. London, D.L. Matthews, S. Maxon, S. Mrowka, A.L. Osterheld, J.H. Scofield, G. Shimkaveg, J.E. Trebes et R.S. Walling. "Short wavelength X-ray laser research at the Livermore National Laboratory". *Phys. Fluids B*. 4, p. 2326, (1992).
- 30 P. Jaegle, S. Sebban, A. Carillon, G. Jamelot, A. Klisnick, P. Zeitoun, B. Rus, M. Nantel, F. Albert et D. Ros. "Ultraviolet luminescence of CSI and CSCL excited by soft x-ray laser". *Journal of Applied Physics*, 81(5):2406–2409, (1997).
- 31 J. E. Trebes, S. B. Brown, E. M. Campbell, D. L. Matthews et D. G. Nilson. "Demonstration of x-ray holography with an x-ray laser". *Science*, 238: 517–519, (1987).
- 32 R. Cauble, L.B. Da Silva, R.J. Barbee, J.C. Moreno et A. Wan. "Micronresolution radiography of laser-accelerated and x-ray heated foils with an x-ray laser". *Phys. Rev. Lett.*, 74(19):3816–3819, (1995).
- 33 J. Zhang, A. G. MacPhee, J. Lin, E. Wolfrum, R. Smith, C. Danson, M. H. Key, C. L. S. Lewis, D. Neely, J. Nilsen, G. J. Pert, G. J. Tallents et J. S. Wark. "A saturated x-ray laser beam at 7 nanometers". *Science*, 276(5315):1097–1100, (1997).
- 34 J. Nilsen, B. J. MacGowan, L. B. Da Silva et J. C. Moreno. "Prepulse technique for producing low Z- Ne-like x-ray lasers", *Phys. Rev. A*, 48(8) :4682, (1993).
- 35 N. M. Ceglio, D. G. Stearns, D. P. Gaines, A. M. Hawryluk et J. E. Trebes. "Multipass amplification of soft x rays in a laser cavity". *Opt. Lett.*, 13:108–110 (1988).
- 36 A. Carillon, H. Z. Chen, P. Dhez, L. Dwivedi, J. Jacoby, P. Jaegle, G. Jamelot, Jie Zhang, M. H. Key, A. Kidd, A. Klisnick, R. Kodama, J. Krishnan, C. L. S. Lewis, D. Neely, P. Norreys, D. O'Neill, G. J. Pert, S. A. Ramsden, J. P. Raucourt, G. J. Tallents et J. Uhm. "Saturated and near-diffraction-limited operation of an xuv laser at 23.6 nm". *Phys. Rev. Lett.*, 68(19):2917–2920, (1992).
- 37 Y. V. Afanasev et V. N. Shlyapsev. "Formation of a population inversion of transitions in ne-like ions in steady-state and transient plasmas". *Sov. J. Quantum Electron*, 19:1606, (1989).
- 38 P. V. Nickles, V. N. Shlyapsev, M. Kalachnikov, M. Schnürer, I. Will et W. Sandner. "Short pulse x-ray laser at 32.6 nm based on transient gain in ne-like titanium". *Phys. Rev. Lett.*, 78(14):2748–2751, (1997).
- 39 M. P. Kalachnikov, P. V. Nickles, M. Schnürer, W. Sandner, V. N. Shlyapsev, C. Danson, D. Neely, E. Wolfrum, J. Zhang, A. Behjat, A. Demir, G. J. Tallents, P. J. Warwick et C. L. S. Lewis. "Saturated operation of a transient collisional x-ray laser". *Phys. Rev. A*, 57(6):4778–4783, (1998).

- 40 A. Klisnick, J. Kuba, D. Ros, R. Smith, G. Jamelot, C. Chenaïs-Popovics, R. Keenan, S. J. Topping, C. L. S. Lewis, F. Strati, G. J. Tallents, D. Neely, R. Clarke, J. Collier, A. G. MacPhee, F. Bortolotto, P. V. Nickles et K. A. Janulewicz. "Demonstration of a 2-ps transient x-ray laser". *Phys. Rev. A*, 65(3):033810, (2002).
- 41 O. Guilbaud, "Etudes et applications des propriétés de cohérence des lasers X-UV à pompage transitoire". Thèse de doctorat, Université Paris XI, Orsay, (2005).
- 42 R. Keenan, J. Dunn, P. K. Patel, D. F. Price, R. F. Smith et V. N. Shlyaptsev. "High-repetition-rate grazing-incidence pumped x-ray laser operating at 18.9 nm". *Phys. Rev. Lett.*, 94:103901, (2005).
- 43 S. Kazamias, K. Cassou, D. Ros, F. Plé, G. Jamelot, A. Klisnick, O. Lundh, F. Lindau, A. Persson, C.-G. Wahlström, S. de Rossi, D. Joyeux, B. Zielbauer, D. Ursescu et T. Kühl. "Characterization of a transient collisional Ni-like molybdenum soft-x-ray laser pumped in grazing incidence". *Physical review A* 77, 033812, (2008).
- 44 M. Grünig, C. Imesch, F. Staub et J.E. Balmer. "Saturated X-ray lasing in Ni-like Sn at 11,9 nm using the GRIP scheme". *Optics Communications* 282, 267–271, (2009).
- 45 B.E. Lemoff, C. Barty et S. Harris. "Femtosecond-pulse-driven, electron excited XUV lasers in eight-time ionized noble gas". *Opt. Lett.*, vol. 19, p. 1574, (1995)
- 46 G.Y. Yin, B.E. Lemoff, C.L. Gordon III, C.P.J. Barty et S.E. Harris. "Demonstration of a 10 Hz Femtosecond-pulse-driven XUV laser at 41.8 nm in Xe IX". *Phys. Rev. Lett.* 74, p.1574–1577, (1995).
- 47 R. Harouturian, S. Sebban, Ph. Balcou, G. Grillon, A. Rousse, S. Kazamias, T. Marin, J. P. Rousseau, L. Notebaert, M. Pittman, J.P. Chambaret, A. Antonetti, D. Hulin, D. Ros, A. Klisnick, A. Carillon, P. Jaegle, G. Jamelot et J-F Wyart. "Saturated amplification of a collisionally pumped Optical-Field-Ionization Soft X-ray laser at 41.8 nm". *Phys. Rev. Lett.* 86, p. 3004 (2001).
- 48 S. Sebban, T. Mocek, D. Ros, L. Upcraft, Ph. Balcou, R. Haroutunian, G. Grillon, B. Rus, A. Klisnick, A. Carillon, G. Jamelot, C. Valentin, A. Rousse, J. P. Rousseau, L. Notebaert, M. Pittman et D. Hulin. "Demonstration of a Ni-Like Kr Optical-Field-Ionization Collisional Soft X-Ray Laser at 32.8 nm", *Phys. Rev. Lett.* 89, 253901 (2002).
- 49 I. Bettaïbi. "Développement et caractérisation des lasers XUV créés par laser femtoseconde". Thèse de doctorat, Ecole polytechnique, (2005).
- 50 T. Mocek, C. M. McKenna, B. Cros, S. Sebban, D. J. Spence, G. Maynard, I. Bettaïbi, V. Vorontsov, A.J. Gonsavles et S.M. Hooker. "Dramatic enhancement of xuv laser output using a multimode gas-filled capillary waveguide". *Phys. Rev. A*. 71, p. 013804-5, (2005).
- 51 J. J. Rocca, V. Shlyaptsev, F. G. Tomasel, O. D. Cortázar, D. Hartshorn et J. L. Chilla. "Demonstration of a Discharge Pumped Table-Top Soft-X-Ray Laser". *Phys. Rev. Lett.* 73, 2192, (1994).
- 52 J. J. Rocca et A.V. Vinogradov. "Repetitively pulsed X-ray laser operating on the 3p-3s transition of the Ne-like argon in a capillary discharge". *Quantum Electronics*, 33 (1): 7-17, (2003).
- 53 T. Ditmire, M. H. R. Hutchinson, M. H. Key, A. MacPhee, I. Mercer, D. Neely, M. D. Perry, R. A. Smith, J.S Wark et M. Zepf. "Amplification of XUV harmonic radiation in a gallium amplifier", *Phys. Rev. A*. 51 (6), R4337-R4340, (1995).
- 54 Y. Wang, E. Granados, M. A. Larotonda, M. Berrill, B. M. Luther, D. Patel, C. S. Menoni et J. J. Rocca. "High-Brightness Injection-Seeded Soft-X-Ray-Laser Amplifier Using a Solid Target", *PRL* 97, 123901, (2006).

- 55 F. Pedaci, Y. Wang, M. Berrill, B. Luther, E. Granados et J. J. Rocca. "Highly coherent injection-seeded 13.2 nm tabletop soft x-ray laser". *Opt. Lett.* 33, 491-493, (2008).
- 56 Y. Wang, E. Granados, F. Pedaci, D. Alessi, B. Luther, M. Berrill et J. J. Rocca. "Phase-coherent, injection-seeded, table-top soft-X-ray lasers at 18.9 nm and 13.9 nm". *Nature Photonics* 2, 94 – 98, (2008).
- 57 P. Agostini, G. Barjot, J. F. Bonnal, G. Mainfray, C. Manus et J. Morellec. "Multiphoton ionization of hydrogen and rare gases". *IEEE J. Quantum. Electron.* QE-4, 667, (1968).
- 58 L. V. Keldysh. "Ionization in field of a strong electromagnetic wave". *Sov. Phys. JETP* 64, 1307, (1965).
- 59 M. V. Ammosov, N. B. Delone et V. P. Krainov. "Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field " *Sov. Phys. JETP* 64, 1991, (1986).
- 60 N. B. Delone et V. P. Krainov. "Tunneling and barrier-suppression ionization of atoms and ions in a laser radiation field". *Physics Uspekhi* 41, 469, (1998).
- 61 P. Chessa, E. De Wispelaere, F. Dorchies, V. Malka, J. R. Marquès, G. Hamoniaux, P. Mora et F. Amiranoff. "Temporal and angular resolution of the ionization-induced refraction of a short laser pulse in helium gas". *Phys. Rev. Lett.* 82, 552, (1999).
- 62 R. Rankin, C. E. Capjack, N. H. Burnett et P. B. Corkum. "Refraction effects associated with multiphoton ionization and ultrashort-pulse laser propagation in plasma waveguides". *Opt. Lett.* 16, 835-837, (1991).
- 63 B. Cros, T. Mocek, I. Bettaibi, G. Vieux, M. Farinet, J. Dubau, S. Sebban et G. Maynard. "Characterization of the collisionally optical-field-ionized soft-x-ray laser at 41,8 nm driven in capillary tubes". *Phys. Rev. A* 73, 033801, (2006).
- 64 S. C. Rae. "Ionization-induced defocusing of intense laser pulses in high-pressure gases". *Opt. Commun.* 97, 25, (1993).
- 65 N. A. Andreev, B. Cros, L. M Gorbunov, G. Matthieussent, P. Mora et R. R. Ramazashvili. "Laser wakefield structure in a plasma column created in capillary tubes". *Phys. Plasma* 9, 3999, (2002).
- 66 J. F. Ward et G. H. New. "Optical third harmonic generation in gases by a focused laser beam". *Phys. Rev.* 185, 57-72, (1969).
- 67 K. C. Kulander, K. J. Schafer et K. C. Krause. *Proceedings of the super intense laser atom physic III workshop*, vol. 316 of NATO advanced study institute, series B/Physics, edited by Piraux (Plenum Press, New York 1993).
- 68 P. B. Corkum. "Plasma perspective on strong field multiphoton ionization", *Phys. Rev. Lett.* 71, 1994-1997, (1993).
- 69 M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L'Huillier et P. B. Corkum. "Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields". *Phys. Rev. A.* 49, 2117-2132, (1994).
- 70 P. Balcou, P. Salieres, A. L'Huillier and M. Lewenstein. "Generalized phase-matching conditions for high harmonics: The Role of field-gradient forces". *Phys. Rev. A* 55, 3204, (1997).
- 71 Site du Center for X-Ray Optics, Berkeley Laboratory: <http://www-cxro.lbl.gov>
- 72 J. W. G. Tisch, R. A. Smith, J. E. Muffet, M. Ciarrocca, J. P. Marangos et M. H. R. Hutchinson. "Angular resolved high-order harmonic generation in helium". *Phys. Rev. A* 49, R28, (1994).



- 73 J Peatross et D. D. Meyerhofer. "Angular distribution of high-order harmonics emitted from rare gases at low density". *Phys. Rev. A*, 51 R906, (1995).
- 74 J. Gautier, P. Zeitoun, C. Hauri, A.-S. Morlens, G. Rey, C. Valentin, E. Papalarazou, J.-P. Goddet, S. Sebban, F. Burgy, P. Mercère, M. Idir, G. Dovillaire, X. Levecq, S. Bucourt, M. Fajardo, M. Merdji, et J.-P. Caumes. "Optimization of the wave front of high-order harmonics". *Eur. Phys. J. D*, DOI: 10.1140/epjd/e2008-00123-2, (2008).
- 75 T. Ditmire, E. T. Gumbrell, R. A. Smith, J. W. G. Tisch, D. D. Meyerhofer et M. H. R. Hutchinson. "Spatial coherence measurement of soft X-ray radiation produced by high order harmonic generation". *Phys. Rev. Lett.* 77, 4756, (1996).
- 76 L. Le Deroff, P. Salières, B. Carré, D. Joyeux et D. Phalippou. "Measurement of the degree of spatial coherence of high-order harmonics using a Fresnel-mirror interferometer". *Phys. Rev A* 61 043802, (2000).
- 77 A.-S. Morlens, "Applications en optique XUV de la phase temporelle et spatiale des harmoniques d'ordres élevés : des miroirs chirpés à l'holographie" Thèse de doctorat, Université Paris XI (2007).
- 78 P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, Ph. Balcou, H. G. Muller et P. Agostini. "Observation of a Train of Attosecond Pulses from High Harmonic Generation". *Science* 292, 1689-1692, (2001).
79. H.G. Muller. "Reconstruction of attosecond harmonic beating by interference of two-photon transitions". *Appl. Phys. B* 74, S17, (2002).
- 80 Y. Mairesse, A. de Bohan, L. J. Frasinski, H. Merdji, L. C. Dinu, P. Monchicourt, P. Breger, M. Kovacev, R. Taïeb, B. Carré, H. G. Muller, P. Agostini et P. Salières. "Attosecond synchronization of high-harmonic soft X-rays". *Science*, 302, pp 1540-1543, (2003).
- 81 S. Kazamias et Ph. Balcou. "Intrinsic chirp of attosecond pulses: single-atom model versus experiment". *Phys. Rev. A* 69, 063416, (2004).
82. P. B. Corkum et F. Krausz. "Attosecond science". *Nat. Phys.* 3, 381, (2007).
83. P. Agostini et L. F DiMauro. "The physics of attosecond ligh pulses". *Rep. Prog. Phys.* 67 813, (2004).
84. G. Sansone, E. Benedetti, F. Calegari, C. Vozzi, L. Avaldi, R. Flammini, L. Poletto, P. Villoresi, C. Altucci, R. Velotta, S. Stagira, S. De Silvestri et M. Nisoli. "Isolated single-cycle attosecond pulses". *Science* 314, 443, (2006).
85. J. Sola, E. Mével, L.Elouga, E. Constant V. Strelkov, L. Poletto, P. Villoresi, E. Benedetti, J.-P. Caumes, S. Stagira, C. Vozzi, G. Sansone et M. Nisoli. "Controlled attosecond electron dynamics by phase-stabilized polarization gating". *Nat. Phys.* 2, 319, (2006).
86. Y. Zheng, Z. Zeng, X. Li, X. Chen, P. Liu, H. Xiong, H. Lu, S. Zhao, P. Wei, L. Zhang, Z. Wang, J. Liu, Y. Cheng, R. Li et Z. Xu. "Enhancement and broadening of extreme-ultraviolet supercontinuum in a relative phase controlled two-color laser field". *Opt. Lett.* 33, 234, (2008).
87. Y. Oishi, M. Kaku, A. Suda, F. Kannari et K. Midorikawa. "Generation of extreme ultraviolet continuum radiation driven by a sub-10-fs two-color field". *Opt. Express* 14, 7230, (2006).
88. H. Mashiko, S. Gilbertson, C. Li, S. D. Khan, M. M. Shakyia, E. Moon et Z. Chang. "Optimizing the photon flux of double optical gated high-order harmonic spectra". *Phys. Rev. Lett.* 100, 103906, (2008).
89. M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, G. Tempea, C. Spielmann, G. A. Reider, P. B. Corkum et Ferenc Krausz. "X-ray pulses approaching the attosecond frontier". *Science* 291 1923, (2001).

90. R. Lopez-Martens, K. Varju, P. Johnsson, J. Mauritsson, Y. Mairesse, P. Salières, M. B. Gaarde, K. J. Schafer, A. Persson, S. Svanberg, C.-G. Wahlström et A. L'Huillier. "Amplitude and phase control of attosecond light pulses". *Phys. Rev. Lett.* 94, 033001, (2005).
91. A.-S. Morlens, Ph. Balcou, Ph. Zeitoun, C. Valentin, V. Laude et S. Kazamias. "Compression of attosecond pulses by extreme-ultraviolet chirped mirrors". *Opt. Lett.* 30, 1554, (2005).
92. A.-S. Morlens, R. López-Martens, O. Boyko, Ph. Zeitoun, Ph. Balcou, K. Varjú, E. Gustafsson, T. Remetter, A. L'Huillier, S. Kazamias, J. Gautier, F. Delmotte et M.-F. Ravet. "Design and characterization of extreme-ultraviolet broadband mirrors for attosecond science". *Opt. Lett.* 31, 1558, (2006).
93. M. Bellini, C. Lyngå, A. Tozzi, M. B. Gaarde, T. W. Hänsch, A. L'Huillier et C.-G. Wahlström. "Temporal coherence of ultrashort high-order harmonic pulses". *Phys. Rev. Lett.* 81, 297, (1998).
94. G. J. Pert. "The calculation of the electron distribution function following tunnelling ionization using a Fokker-Planck method". *J. Phys. B-Atomic Molecular Optical Physics* 34, 881-908, (2001).
95. W. Eissner. "The UCL distorted wave code". *Comp. Phys. Comm.* 114, 295, (1998).
96. W. Eissner, M. Jones et H. Nussbaumer. "Techniques for calculation of atomic structures and radiative data including relativistic corrections". *Comp. Phys. Comm.* 8, 270, (1974).
97. G. J. Linford, E. R. Peressini, W. R. Sooy et M. L. Spaeth. "Very Long Lasers". *Appl. Opt.* 13, 379-390, (1974).
98. G. Maynard, F. Lambert, N. Andreev, B. Robillard, A. Boudaa, J. Clerouin, B. Cros, A. Lenglet, T. Mocek et S. Sebban. "Determination of the ion temperature in a plasma created by optical field ionization". *Contrib. Plasma Phys.* 47, 352, (2007).
99. B. Talin, A. Calisti, L. Godberg, R. Stamm, R. W. Lee et L. Klein. "Frequency-fluctuation model for line-shape calculations in plasma spectroscopy". *Phys. Rev. A* 51, 1918, (1995).
100. J. Koch, B. MacGowan, L. DaSilva, D. Matthews, J. Underwood, P. Batson, R. Lee, R. London et S. Mrowka. "Experimental and theoretical investigation of neonlike selenium x-ray laser spectral linewidths and their variation with amplification". *Phys. Rev. A* 50, 1877 (1994).
101. D. Strickland et G. Mourou. "Compression of amplified chirped optical pulses". *Opt. Comm.* 56, p. 219, (1985).
102. M. Pittman, S. Ferré, J. P. Rosseau, L. Notebaert, J. P. Chambaret et G. Chériaux. "Design and characterization of a near-diffraction-limited femtosecond 100-TW 10-Hz high-intensity laser system". *Appl. Phys. B* 74, 529-535, (2002).
103. F. Verluise, V. Laude, Z. Cheng, Ch. Spielmann et P. Tournois. "Amplitude and phase control of ultrashort pulses by use of an acousto-optic programmable dispersive filter: pulse compression and shaping". *Opt. Lett.*, 25, 575-577, (2000).
104. S. Ferre. "Caractérisation expérimentale et simulation des effets thermiques d'une chaîne laser ultra-intense à base de saphir dopé au titane". Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique (2002).
105. J. Dunn, R.F. Smith, J. Nilsen, J.R. Hunter, S. Hubert, S. Jacquemot, C. Rémond, R. Marmoret, M. Fajardo, Ph. Zeitoun, L. Vanbostal, C.L.S. Lewis, M.F. Ravet et F. Delmotte. "Longitudinal coherence measurements of a transient collisional x-ray laser". *Opt. Lett.* 28, p. 1, (2003).
106. P. Celliers, F. Weber, L.B. Dasilva, T.W. Barbee Jr., R. Cauble, A.S. Wan et J.C. Moreno. "Fringe formation and coherence of soft-x-ray laser beam illuminating a Mach-Zehnder interferometer" *Opt. Lett.* 20, p. 1907, (1995).

- 107 Ph. Zeitoun, S. Le Pape, J. J. Rocca, A. Carillon, P. Dhez, M. François, S. Hubert, M. Idir et D. Ros. "Characterisation of an X-ray laser beam". Proceedings of SPIE. San Diego, (2001).
- 108 D. Joyeux, F. Pollack, J. Svatos, et D. Phalippou. "Applications of wavefront division interferometers in soft x rays". Rev. Sci. Instr. 66, p.2, (1995).
- 109 N. Hasegawa, T. Kawachi, A. Sasaki, M. Kishimoto, K. Sukegawa, M. Tanaka, R. Tai, Y. Ochi, M. Nishikino, K. Nagashima et Y. Kato. "Direct measurement of the temporal profile of the amplification gain of the transient collisional excitation neonlike manganese x-ray laser medium". Phys. Rev. A 76, 043805, (2007).
- 110 J. Koch, B. MacGowan, L. DaSilva, D. Matthews, J. Underwood, P. Batson, R. Lee, R. London et S. Mrowka. "Experimental and theoretical investigation of neonlike selenium x-ray laser spectral linewidths and their variation with amplification". Phys. Rev. A 50, 1877, (1994).
- 111 J. Gautier, F. Delmotte, M. Roulliay, F. Bridou, M.-F. Ravet et A. Jérôme. "Study of normal incidence of three-component multilayer mirrors in the range 20-40 nm". Appl. Opt. 44, 384-390, (2005).
- 112 Y. Liu, Y. Wang, M. A. Larotonda, B. M. Luther, J. J. Rocca et D. T. Attwood. "Spatial coherence measurements of a 13.2 nm transient nickel-like cadmium soft x-ray laser pumped at grazing incidence". Opt. Express 14, 12872-12879, (2006).
- 113 T. Ditmire, E. T. Gumbrell, R. A. Smith, J. W. G. Tisch, D. D. Meyerhofer et M. H. R. Hutchinson. "Spatial coherence measurement of soft x-ray radiation produced by high order harmonic generation". Phys. Rev. Lett. 77, 4756, (1996).
- 114 F. Pedaci, Y. Wang, M. Berrill, B. Luther, E. Granados et J. J. Rocca. "Highly coherent injection-seeded 13.2 nm tabletop soft x-ray laser". Opt. Lett. 33, 491-493, (2008).
- 115 D. G. Lee, J. J. Park, J. H. Sung et C. H. Nam, "Wave-front phase measurements of high-order harmonic beams by use of point-diffraction interferometry". Opt. Lett. 28, 480-482, (2003).
- 116 S. Le Pape, Ph. Zeitoun, M. Idir, P. Dhez, J. J. Rocca et M. François. "Electromagnetic-field distribution measurements in the soft x-ray range : full characterization of a soft x-ray laser beam". Phys. Rev. Lett. 88, 183901, (2002).
- 117 S. Le Pape. Thèse de doctorat, Université Paris XI.
- 118 P. Mercère, P. Zeitoun, M. Idir, S. Le Pape, D. Douillet, X. levecq, G. Dovillaire, S. Bucourt, K.A. Goldberg, P.P. Naulleau, S. Rekawa. "Hartmann wave-front measurement at 13.4 nm with  $\lambda_{\text{EUV}}/120$  accuracy". Opt. Lett. 28, N°17 p 1534-1536, (2003).
- 119 Brevet Imagine Optic, PCT/FR02/02495, (2002).
- 120 A Marechal, Rev. D'Optique, 26, 257, (1947).
- 121 Siegman Lasers, University science books, Hermite-gaussian modes, pages 643-647, 685-695, 798-804, 821-822.



## **Etude et développement de sources laser XUV par injection d'harmoniques d'ordre élevé**

Les travaux réalisés dans le cadre de cette thèse visent à étudier une géométrie de lasers XUV inspirée des lasers de puissance. Cette architecture, consistant en un injecteur (une source d'harmoniques d'ordre élevé) couplé à un amplificateur (plasma créé par laser), correspond à celle d'une chaîne laser de puissance dans la gamme spectrale de l'XUV. Le laser à 32,8 nm étudié ici, est produit par l'injection d'harmonique d'ordre élevé dans un plasma de krypton créé par Optical Field Ionisation (OFI). Ce schéma, initialement testé par T. Ditmire en 1995, a été validé en 2003 au Laboratoire d'Optique Appliquée avec un amplificateur plasma créé par l'interaction d'un laser intense et d'un milieu gazeux. Cette thèse s'inscrit dans la continuité de ce dernier travail en tentant d'aborder différents aspects liés, non seulement à une meilleure compréhension des processus physiques impliqués, mais aussi à la caractérisation spatio-temporelle de ce type de source.

Nous avons démontré expérimentalement et pour la première fois qu'une source dans le domaine de l'XUV peut être à la fois très compacte, énergétique (1  $\mu\text{J}$  par impulsion), proche de la limite de diffraction et de celle de Fourier. En effet, grâce au filtrage spatial des harmoniques par le milieu amplificateur, le laser XUV injecté à 32,8 nm montre un profil spatial gaussien avec une divergence de 0,7 mrad (à  $1/e^2$ ). Le front d'onde a été mesuré avec un senseur de type Hartmann et atteint une valeur de  $\lambda/17$  en écart quadratique moyen, démontrant que cette source XUV est limitée par la diffraction. Les caractérisations temporelles du laser montrent que le temps de cohérence est de l'ordre de la durée d'émission spontanée de l'amplificateur. Les résultats de la mesure de la cohérence temporelle présentent un profil gaussien de largeur spectrale relative  $\Delta\lambda/\lambda$  égale à  $10^{-5}$  (à mi-hauteur) correspondant à une durée d'impulsion de l'ordre de 5 ps.

## **Study and development of a soft X-ray laser seeded by high-order harmonic**

The work in this thesis aimed to study a geometry of XUV lasers inspired by high power laser. This architecture, consisting of an injector (a source of high-order harmonics) coupled to an amplifier (plasma created by laser), corresponds to that of a laser chain in the spectral range of the XUV. The laser at 32.8 nm studied here, is produced by the injection of high-order harmonic in a krypton plasma created by Optical Field Ionization (OFI). This scheme, initially tested by T. Ditmire in 1995, was validated in 2003 with a plasma amplifier created by the interaction of intense laser and a gaseous medium at the Laboratoire d'Optique Appliquée. This thesis is a continuation of that work in trying to address different aspects, not only a better understanding the physical processes involved, but also the spatio-temporal characterization of this type of source.

We have demonstrated experimentally for the first time a source in the XUV, which can be both highly compact, energetic (1  $\mu\text{J}$  per pulse), close to the diffraction limit and Fourier transform limited. Indeed, through the spatial filtering of harmonics by the amplifying medium, the injected XUV laser at 32.8 nm shows a Gaussian spatial profile with a divergence of 0.7 mrad (at  $1/e^2$ ). The wavefront was measured with a Hartmann sensor and presents a value of  $\lambda/17$  in standard deviation, demonstrating that the XUV source is diffraction limited. The temporal characterization of laser shows that the coherence time is of the order of the duration of spontaneous emission of the amplifier. The temporal coherence presents a Gaussian profile with a relative spectral width  $\Delta\lambda/\lambda$  equal to  $10^{-5}$  (FWHM) corresponding to a pulse duration of about 5 ps.